

УДК 539.173+539.173.8+5393.1.6
 PACS 24.75.+1, 25.85.-w, 25.85.Ec, 25.85. Ca
 DOI 10.24144/2415-8038.2020.48.38-49

І.В. Пилипчинець, Є.В. Олейников, О.О. Парлаг

Інститут електронної фізики НАН України, 88017, м. Ужгород, вул. Університетська, 21, Україна,
 e-mail: igor.profi@gmail.com

РОЗРАХУНОК ВИХОДІВ ПРОДУКТІВ ФОТОПОДІЛУ ЯДЕР АКТИНІДІВ – ДЖЕРЕЛ ЗАПІЗНІЛОГО ГАММА-ВИПРОМІНЮВАННЯ ДЛЯ ПОТРЕБ АНАЛІЗУ ЇХ ІЗОТОПНОГО СКЛАДУ

Представлено результати моделювання масових розподілів продуктів фотоподілу ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu з застосуванням GEF- коду, та результати розрахунків чисельних значень відношення виходів легких та важких продуктів (Y_{88}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{138} , Y_{88}/Y_{138} , Y_{89}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{142} , Y_{88}/Y_{142} , Y_{89}/Y_{142}) для вказаних ядер. Проведено оцінку різниці між чисельними значеннями відношення виходів продуктів для ядерних пар ^{232}Th і ^{235}U 5.0÷43.2%, ^{235}U і ^{238}U 14.1÷39.3%, ^{238}U і ^{239}Pu 14.1÷31.4%. Результати моделювання вказують на можливість застосування зазначених вище пар продуктів поділу, як джерел запізненого гамма-випромінювання, при проведенні неруйнівного ізотопного аналізу ядерних матеріалів.

Ключові слова: ядерні матеріали, ізотопний аналіз, фотоподіл, виходи продуктів, запізнене гамма-випромінювання.

Вступ

Одна з найважливіших задач атомної промисловості це задача контролю нерозповсюдження подільних ядерних матеріалів (наприклад: ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu) на всіх етапах його використання (переміщення, зберігання) [1]. Для успішного вирішення цієї задачі необхідна надійна інформація про їх ізотопний і кількісний склад. Як правило, переміщення та зберігання подільних ядерних матеріалів відбувається в герметичних капсулах або контейнерах із нержавіючої сталі [2, 3].

Один із широко застосовуваних неруйнівних методів виявлення та ізотопної ідентифікації неекранованих та екранованих подільних ядерних матеріалів базується на використанні запізненого гамма-випромінювання від продуктів їх поділу [4–6]. Суть даного методу полягає у ви-

користанні експериментально отриманої інформації про співвідношення інтенсивності стимульованого запізненого гамма-випромінювання від легких та важких продуктів їх поділу. Виходи легких продуктів-уламків суттєво залежать від маси подільних ядер, так при однакових енергіях збудження їх масові розподіли зсуваються у сторону більших мас зі збільшенням маси подільного ядра. В той же час, масовий розподіл важких уламків є практично постійним і не залежить суттєво від маси подільного ядра.

Продукти поділу, які є потенційними джерелами запізненого гамма-випромінювання придатними для аналізу екранованих і неекранованих ядерних матеріалів, повинні задовольняти ряду основних вимог: а) високою імовірністю їх утворення у процесі поділу; б) наявністю широкого набору інтенсивних ліній гамма-випромінювання з енергіями > 1000 кеВ,

вільних від спектрометричної інтерференції (характеристичних, фонових гамма-ліній, від продуктів супутніх реакцій); в) зі зручними по часу періодами напіврозпаду для проведення аналізу. Треба відмітити, що при проведенні аналізу необхідно використовувати пари продуктів поділу з близькими по часу періодами напіврозпаду.

Цим вимогам відповідають наступні продукти-уламки: ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{88}Rb , ^{89}Rb , ^{92}Sr , ^{135}I , ^{138}Cs , ^{142}La , які були утворені в результаті (n,f)- реакцій, індукованими тепловими, швидкими і високоенергетичними (14 MeV) нейтронами [4–6] та гальмівним випромінюванням електронних прискорювачів [7–9]. Їх ядерно-фізичні характеристики [10] відповідають наведеним вище критеріям. В приведених вище роботах [4–9] була продемонстрована можливість їх використання для ізотопної ідентифікації неекранованих [4–7] та екранованих [8, 9] подільних ядерних матеріалів.

Метою представленої роботи є аналіз можливості використання вказаних нуклідів-уламків (з $A = 87, 88, 89, 92, 135, 138, 142$), як потенційних джерел запізнілого гамма-випромінювання, для ідентифікації 4-ох основних подільних ядерних матеріалів (^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu) при їх активації гальмівним випромінюванням, отриманим на електронному прискорювачі – мікротроні. Тобто, необхідно було провести розрахунки залежності чисельних значень відношень пост-нейтронних виходів пар уламків (Y_{88}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{138} , Y_{88}/Y_{138} , Y_{89}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{142} , Y_{88}/Y_{142} , Y_{89}/Y_{142}) для вказаних подільних ядер, утворених при фіксованих енергії стимуляції реакції фотоподілу.

Моделювання пост-нейтронних виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів

Для вирішення поставленої задачі виникає необхідність у моделюванні пост-

нейтронних виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu при фіксованій енергії гальмівного випромінювання, та розрахунках чисельних значень відношень виходів пар уламків, запізніле гамма-випромінювання яких є придатним для проведення ізотопного аналізу вказаних ядер.

Для моделювання використовувався GEF-код [11], який дозволяє проводити розрахунки характеристик для подільних ядер при будь-якому типі ділення (спонтанне, індуковане нейтронами і протонами, фотоділення), та яким можна проводити розрахунки пост-нейтронних виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів [12, 13].

Моделювання проводилося для гальмівного випромінювання, яке генерується електронами з енергією 12,5 MeV на танталовому радіаторі товщиною 1 мм. Симуляція спектру гальмівного випромінювання проводилася з використанням розрахункового коду "GEANT4 10.7" [14, 15], при наступних вхідних параметрах: кількість подій – 10^8 , та для відстаней: джерело електронів – гальмівна мішень – об'єкт опромінення, які становили – 18 і 100 мм відповідно. Вибір вказаної енергії був обумовлений можливістю проведення ізотопного аналізу як для неекранованих, так і екранованих подільних ядерних матеріалів [16], тобто енергія була менше порогів можливих фотоядерних реакцій для потенційних елементів з яких виготовляють контейнери з неіржавіючої сталі.

Результати розрахунку спектру гальмівного випромінювання з енергією 12.5 MeV представлено на Рис. 1. На цьому ж рисунку представлені перерізи (γ ,f)- реакцій для ядер актинідів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U і ^{239}Pu з бібліотеки оцінених ядерних даних ENDF [17], які використовувалися для розрахунків середньої енергії збудження для вказаних подільних ядер [12].

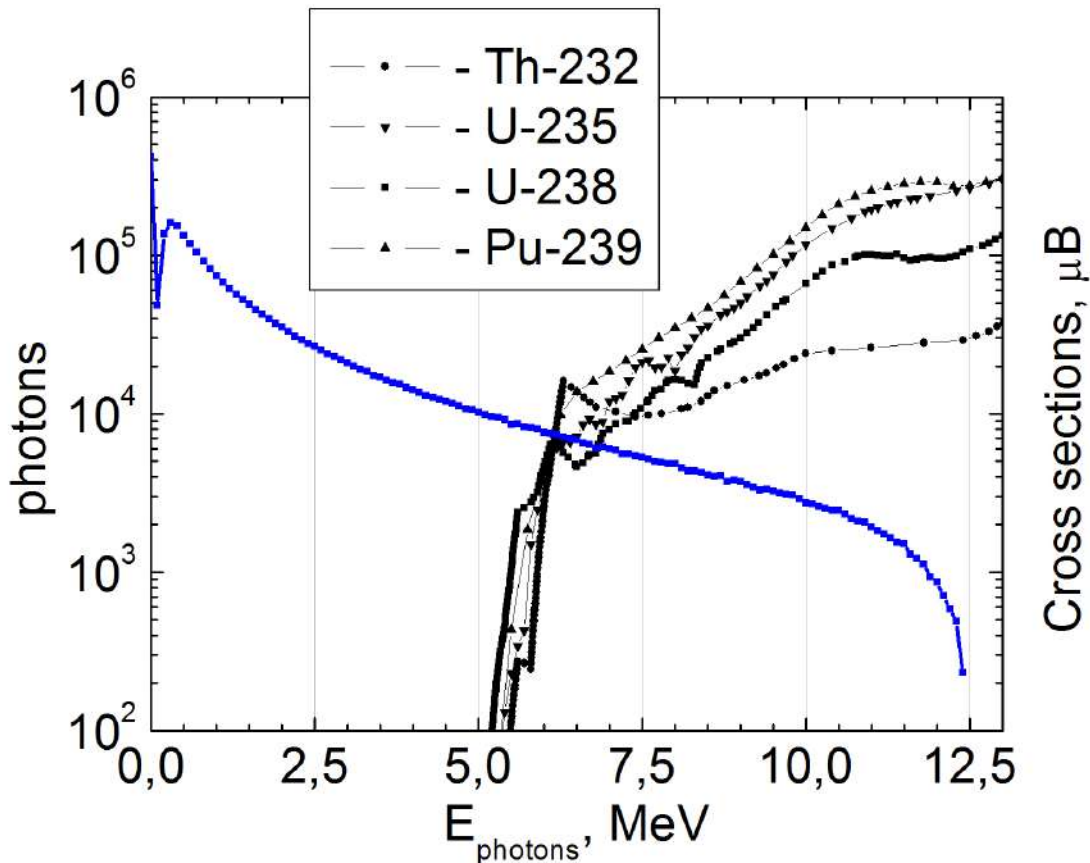


Рис. 1: Спектр гальмінового випромінювання та перерізи реакцій фотоподілу ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U і ^{239}Pu

Розраховані значення середніх енергій збудження для фотоподілу ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U і ^{239}Pu при максимальних енергіях гальмінового випромінювання 12,5 MeV становили – 8.821; 10.013; 9.744 та 9.922 MeV, відповідно.

Отримані значення використовувалися у якості вхідних даних при моделюванні GEF- кодом пост-нейтронних виходів продуктів для подільних ядер $^{232}\text{Th}^*$, $^{235}\text{U}^*$, $^{238}\text{U}^*$ і $^{239}\text{Pu}^*$. Для розрахунків використовувалася остання версія GEF- коду – 2020/1.1 [18].

Результати розрахунку пост-нейтронних виходів продуктів поділу представлені на панелі Рис. 2. Тут же приведені існуючі експериментальні дані, які були досліджені при близьких енергіях збудження. Значення енергій збудження – для ^{232}Th : – 8.8 MeV [19], 8.35 MeV [20]; ^{235}U : 9.7 MeV [21]; ^{238}U : MeV 9.7 [22], 9.09 MeV [23].

Результати моделювання пост-нейтронних виходів ^{239}Pu порівнювалися з оціненими значеннями виходів продуктів реакції ^{238}Pu (n_{fast}, f) [24] в результаті якої утворюється аналогічне подільне ядро

$^{239}\text{Pu}^*$, оскільки відсутні експериментальні дані по виходам продуктів фотоподілу при близьких енергіях. Середня енергія збудження $\langle E^* \rangle$ для подільного ядра $^{239}\text{Pu}^*$ при нейтронному поділі розраховувалася із середньої енергії нейтронів $\langle E_n \rangle$ по формулі (1):

$$\langle E^* \rangle = (\Delta^{238}\text{Pu} + \Delta n - \Delta^{239}\text{Pu}) + \langle E_n \rangle, \quad (1)$$

де Δ – надлишок (або дефект) маси, значення яких бралися з [25]. Значення $\langle E^* \rangle = 6.14$ MeV.

Результати проведених розрахунків узгоджуються з експериментальними даними в межах похибок для подільних ядер ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu при близьких енергіях збудження. У випадку ^{232}Th спостерігається розбіжність між розрахованими та експериментальними значеннями виходів [19, 20], як для легких, так і для важких продуктів (при максимальних значеннях їх виходів). Треба відмітити, що для ^{232}Th розбіжність спостерігається і між існуючими експериментальними даними.

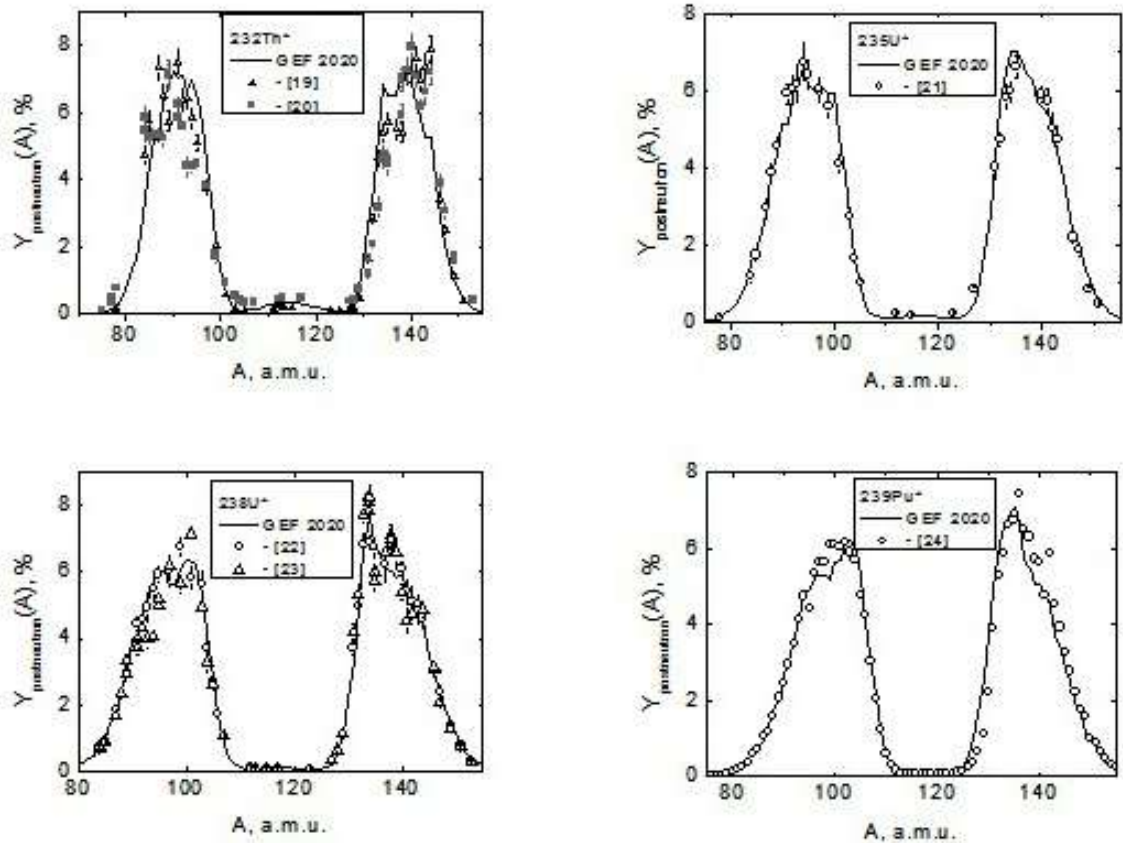


Рис. 2: Пост-нейтронні виходи продуктів для подільних ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U та ^{239}Pu

На рис. 3 приведені залежності пост-нейтронних виходів продуктів фотоподілу ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu від маси продуктів при однаковій енергії гальмівного випромінювання – 12.5 МеВ. Як видно, з представлених на рисунку масових розподілів, виходи легких продуктів зсуваються у сторону більших мас зі збільшенням маси подільного ядра. В той же час, масовий розподіл важких уламків залишається практично незмінним і не залежить суттєво від маси подільного ядра. Це свідчить, що виходи легких продуктів фотоподілу ядер-актинідів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu залежать від маси подільних ядер при однакових енергіях стимуляції.

Проведено розрахунки залежності відношень (Y_L/Y_H) чисельних значень виходів легких (Y_L) і важких (Y_H) продуктів від маси подільних ядер. Розрахунки проводилися для наступних пар продуктів Y_{88}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{138} , Y_{88}/Y_{138} , Y_{89}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{142} , Y_{88}/Y_{142} , Y_{89}/Y_{142} . Для аналізу вибиралися продукти поділу, які є потенційними джерелами запізнілого гамма-випромінювання придатним для ізотопного аналізу екранованих і неекранованих ядерних матеріалів та задовольняли вище перерахованим вимогам: $Y_{87} = Y_{87\text{Kr}}$, $Y_{88} = Y_{88\text{Kr}}$, $Y_{89} = Y_{89\text{Rb}}$, $Y_{92} = Y_{92\text{Sr}}$, $Y_{135} = Y_{135\text{I}}$, $Y_{138} = Y_{138\text{Cs}}$, $Y_{142} = Y_{142\text{La}}$ [10].

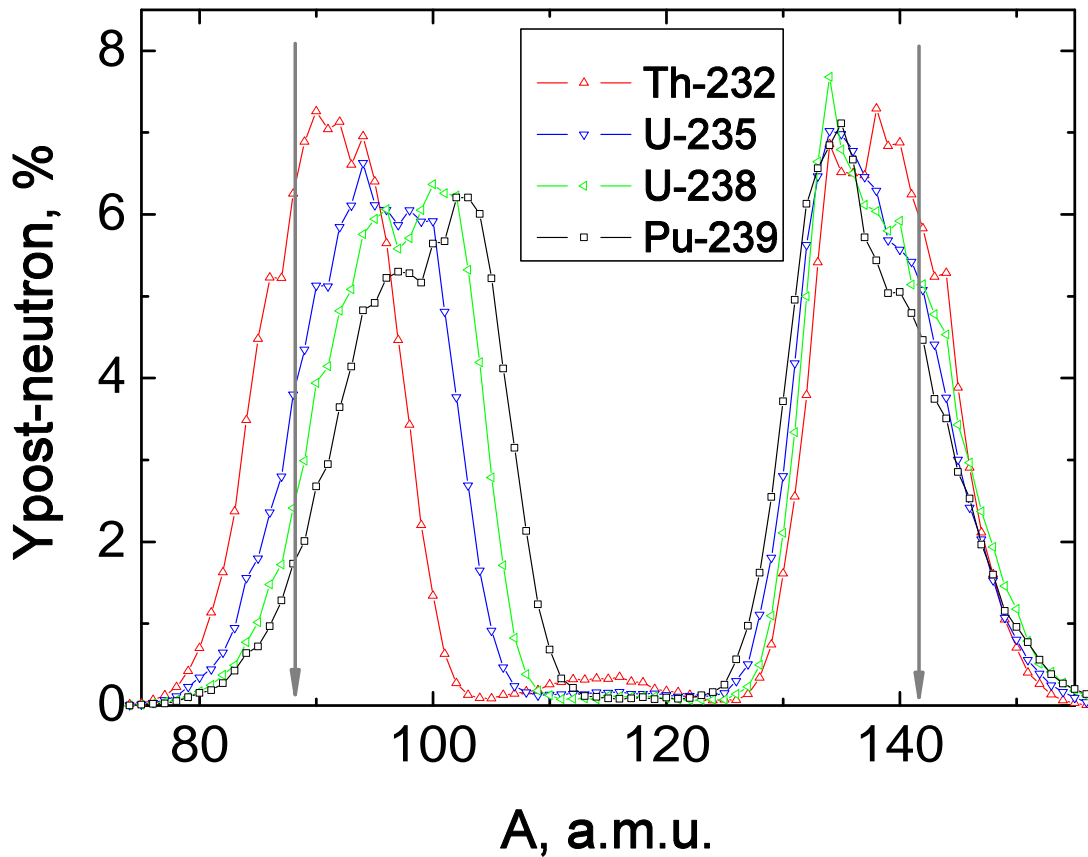


Рис. 3: Залежність пост-нейтронних виходів продуктів поділу ядер $^{232}\text{Th}^*$, $^{235}\text{U}^*$, $^{238}\text{U}^*$ та $^{239}\text{Pu}^*$ від їх маси

Результати розрахунків Y_L/Y_H представлені на панельному рис. 4. Як видно з рисунку розраховані відношення виходів залежать від маси подільних ядер. Тут же представлені відношення виходів Y_L/Y_H , для розрахунку яких використовувалися експериментальні дані [19–24]. Отримані данні узгоджуються між собою в межах експериментальних похибок.

У таблиці 1 представлені чисельні значення відношення виходів Y_L/Y_H для подільних ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu та рі-

зниця (відмінність) у процентах (%) між чисельними значеннями відношення пар уламків для вказаних ядер. Різниця у процентах розраховувалася між парами ядер ^{232}Th і ^{235}U ($5.0 \div 43.2\%$), ^{235}U і ^{238}U ($14.1 \div 39.3\%$), ^{238}U і ^{239}Pu ($14.1 \div 31.4\%$).

Таким чином, вибрані пари продуктів фотоподілу ядер ^{232}Th , ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu можуть бути застосовані у якості джерел запізнитого гамма-випромінювання при проведенні неруйнівного ізоотопного аналізу вказаних актинідів.

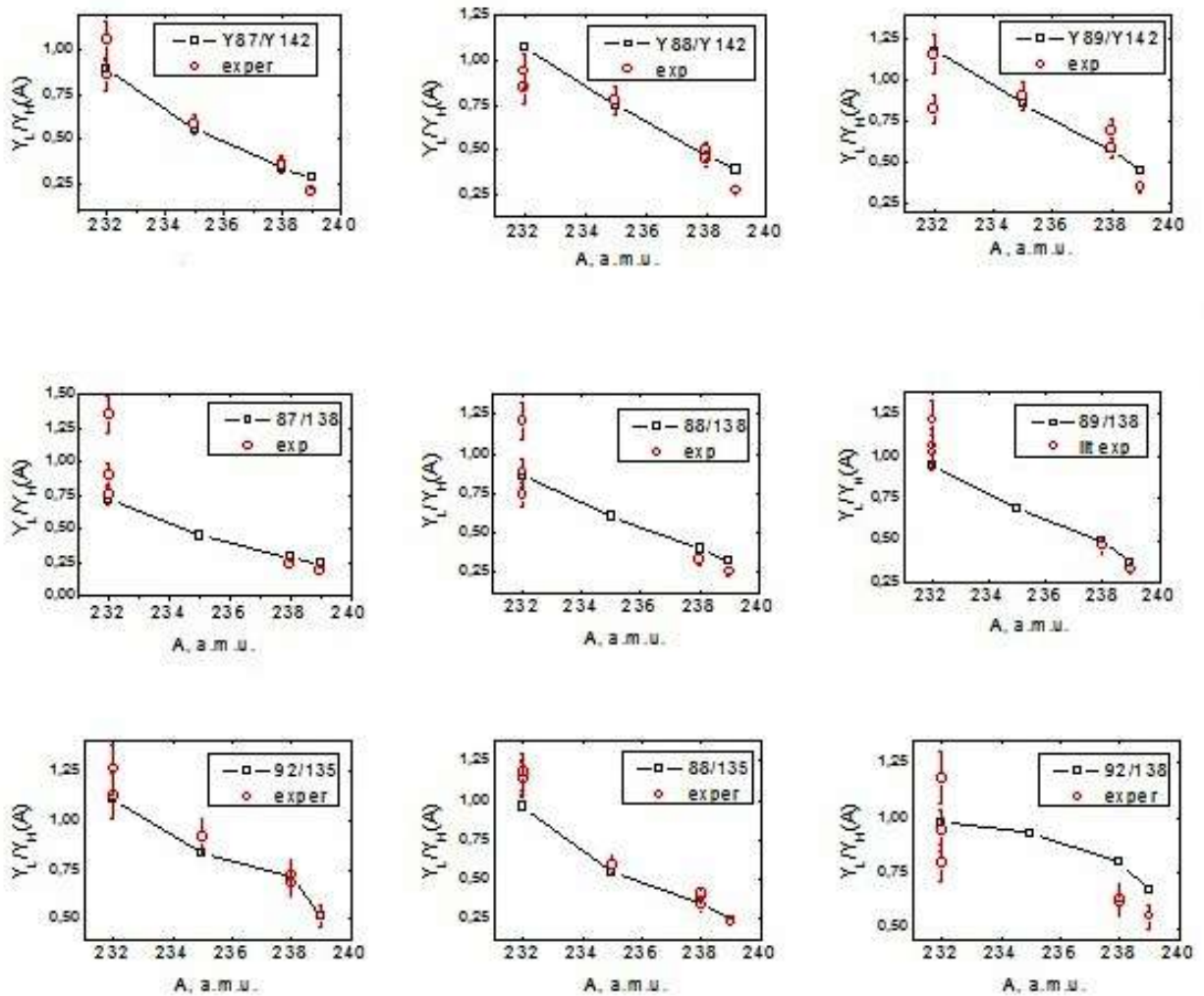


Рис. 4: Залежність відношень чисельних значень виходів легких та важких продуктів від маси подільних ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , та ^{239}Pu

Висновки

В результаті проведених розрахунків встановлені оптимальні пари легких і важких продуктів (з близькими по часу періодами напіврозпаду) фотоподілу ядер актинідів ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , які є потенційними джерелами запізнілого гамма-випромінювання, та придатні для аналізу їх ізотопного складу. Продемонстровано, що розраховані комбінації чисельних значень відношень виходів легких та важких продуктів (Y_{88}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{138} , Y_{88}/Y_{138} ,

Y_{89}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{142} , Y_{88}/Y_{142} , Y_{89}/Y_{142}) суттєво залежать від маси подільних ядер.

Проведені розрахунки дозволяють визначити відношення виходів легких і важких продуктів фотоподілу ядер актинідів, для яких відсутні експериментальні дані, та дозволять оптимізувати процедуру неруйнівного аналізу ізотопного складу неекранованих і екранованих подільних ядерних матеріалів на електронному прискорювачі – мікротроні.

Автори висловлюють подяку д. фіз.-мат. наук, професору Суслікову Л.М. за плідні дискусії та поради.

Табл. 1: Чисельні значення відношення виходів Y_L/Y_H для подільних ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , та значення різниці у відношеннях виходів між сусідніми парами ядер

Y_L/Y_H	^{232}Th	%	^{235}U	%	^{238}U	%	^{239}Pu
Y_{88}/Y_{135}	0.95918	43.2	0.54439	34.7	0.35532	31.4	0.24371
Y_{92}/Y_{135}	1.1013	24.0	0.8372	15.2	0.70991	27.8	0.51245
Y_{92}/Y_{138}	0.97806	5.0	0.92957	14.1	0.79844	16.1	0.66998
Y_{87}/Y_{138}	0.71654	37.9	0.44515	36.0	0.28503	17.2	0.23589
Y_{88}/Y_{138}	0.85724	29.5	0.60445	33.9	0.39964	20.3	0.31862
Y_{89}/Y_{138}	0.94446	26.8	0.69173	28.3	0.49569	25.6	0.369
Y_{87}/Y_{142}	0.89638	38.5	0.5129	39.3	0.33437	14.1	0.28735
Y_{88}/Y_{142}	1.0724	30.2	0.74857	37.4	0.46882	17.2	0.38813
Y_{89}/Y_{142}	1.18151	27.5	0.85666	32.1	0.5815	22.7	0.4495

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

- [1] Gozani. Active non destructive assay of nuclear materials. Principles and applications/ Gozani, Tsahi // [NUREG/CR-0602. SAI MLM 2585. Contract No. FINA 10766. USA. 1981. – 403 p.](#)
- [2] Agarwal C. Nondestructive assay of plutonium in empty stainless steel boxes by apparent mass method / C. Agarwal, S. Chaudhury, T.N.Nathaniel, A. Goswami // [Radioanal Nucl Chem – 2012. – V. 294. – P. 77-80.](#)
- [3] De Stefano R. Feasibility study of fissile mass detection in 870 L radioactive waste drums using delayed gamma rays from neutron-induced fission / R. De Stefano, C. Carasco, B. Pérot, E. Simon, T. Nicol, E. Mauerhofer // [J Radioanal Nucl Chem – 2019. – V. 322. – P. 1185-1194.](#)
- [4] Beddingfield D.H. Identification of fissile materials from fission product gamma-ray spectra / D.H. Beddingfield, E.E. Cecil // [Nucl. Instr. Meth. A. – 1998. – V. 417. – P. 405-412.](#)
- [5] Marrs R.E. Fission-product gamma-ray line pairs sensitive to fissile material and neutron energy / R.E. Marrs, E.B. Norman, J.T. Burkeetal // [Nucl. Instr. Meth. A – 2008. – V. 592. – P. 463-471.](#)
- [6] Iyengar A. Distinguishing fissions of ^{232}Th , ^{237}Np and ^{238}U with beta-delayed gamma rays / A.Iyengar, E.B. Norman, C. Howard, C. Angell, A. Kaplan, J.J. Ressler, P. Chodash, E. Swanberg E., A. Czeszumaska, B. Wang, R. Yee, H.A. Shugart // [Nucl. Instr. Meth. B. – 2013. – V. 304. – P. 11-15.](#)
- [7] Hollas C.L. Analysis of fissionable material using delayed gamma rays from photofission / C.L. Hollas, D.A. Close, C.E. Moss // [Nuclear Instruments and Methods in Physics – 1987. — Research B 24/25 – 503-505.](#)
- [8] Carrel F. Identification of Actinides Inside Nuclear Waste Packages by Measurement of Fission Delayed Gammas / F. Carrel, M. Gmar, F. Laine, J. Lordon, J.-L. Ma, C. Passard // [2006 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record. N28-1. – P. 909-913.](#)

- [9] Carrel F. Identification and differentiation of actinides inside nuclear waste packages by measurement of delayed gammas/F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, J. Loidon, J.-L. Ma, C. Passard, B. Poumarède // [IEEE Transactions on Nuclear Science. 2010. V. 57, No. 5. – P. 2862- 2871.](#)
- [10] [Decay radiation search. Decay radiation database version of 12/2/2019](#) .
- [11] Schmidt K.-H. General Description of Fission Observables: GEF Model Code / K.-H. Schmidt, B. Jurado, C. Amouroux and C. Schmitt // [Nuclear Data Sheets – 2016. – V. 131. – P. 107–221.](#)
- [12] Pylypchynets I.V. Simulation the yields of actinide nuclei photofission products induced by bremsstrahlung of electron accelerators / I.V. Pylypchynets, O.O. Parlag, E.V. Oleynikov // [Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics \[Nauk. Visn. Uzhhorod. Univ. Ser. Fis\] – 2017 – T-42, pp. 169-1177.](#)
- [13] Bernard D. A photofission delayed γ -ray spectra calculation tool for the conception of a nuclear material characterization facility / D. Bernard, O. Serot, E. Simon, L. Boucher and S. Plumeri // [EPJ Web of Conferences – 2018. – V. 170. 06001 5 p.](#)
- [14] [GEANT4 10.7 \(4 December 2020\).](#)
- [15] [Introduction to GEANT4.](#)
- [16] Парлаг О.О. Спосіб стимуляції запізнілого гамма-випромінювання від продуктів поділу ядер актинідів в герметичних контейнерах із неіржавіючої сталі для ідентифікації їх ізотопного складу / О.О.Парлаг, В.Т. Маслюк, А.М. Довбня, І.В. Пилипчинець, В.М. Головей, О.І. Лендел // [Патент України на корисну модель № 133090 \(Бюлетень № 6 від 25.03.2019 р.\).](#)
- [17] Evaluated Nuclear Data File (ENDF).// [Database Version of 2017-10-27.](#)
- [18] [GEF 2020/1.1.](#)
- [19] Piessens H. Photon induced fission of ^{232}Th with 12 and 20 MeV bremsstrahlung / H. Piessens, E. Jacobs, D. De Frenne, A. De Clercq, M. Verboven, G. De Smeet // [Proceeding of the XV-th International Symposium on Nuclear Physics - Nuclear Fission - November 11-15, 1985 in Gaussig \(GDR\) \(ed. D. Seeliger, K., Seidel and H. Marten\) April 1986. – P. 92 – 95.](#)
- [20] Naik H. Fission product yield distribution in the 12, 14, and 16 MeV bremsstrahlung-induced fission of ^{232}Th / H. Naik, G.N. Kim, R. Schwengner, K. Kim, R. John, R. Massarczyk, A. Junghans, A. Wagner and A. Goswami // [Eur. Phys. J. A \(2015\) 51: 150.](#)
- [21] Jacobs E. Product yields for the photofission of ^{235}U with 12-, 15-, 20-, 30-, and 70-MeV bremsstrahlung / E. Jacobs, H. Thierens, D. De Frenne, A. De Clercq, P. D’hondt, P. De Gelder, A.J. Deruytter // [PRC – 1980 – V. 21. – P. 237- 245.](#)
- [22] Jacobs E. Product yields for the photofission of ^{238}U with 12-, 15-, 20-, 30-, and 70-MeV bremsstrahlung / E. Jacobs, H. Thierens, D. De Frenne, A. De Clercq, P. D’hondt, P. De Gelder, A.J. Deruytter // [Physical Review C – 1980. – V. 19. – P. 422-432.](#)
- [23] Naik H. Mass yield distributions of fission products from photo-fission of ^{238}U induced by 11.5–17.3 MeV bremsstrahlung / H. Naik, F. Carrel, G.N. Kim, F. Laine, A. Sari, S. Normand and A. Goswami // [Eur. Phys. J. A \(2013\) 49: 94.](#)

- [24] England T.R. Endf-349 evaluation and compilation of fission product yields 1993 /T.R. England, B.F. Rider// [Technical Report LA-UR-94-3106, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos New Mexico, USA, 1994. – P.1-174](#)
- [25] [Nuclear Wallet Card Search. Nuclear Wallet Cards database version of 7/10/2019.](#)

Стаття надійшла до редакції 15.07.2020

И.В. Пилипчинец, Є.В. Олейников, О.А. Парлаг

Институт электронной физики НАН Украины, 88017, г. Ужгород, ул. Университетская, 21, Украина,
e-mail: igor.profi@gmail.com

РАСЧЕТ ВЫХОДОВ ПРОДУКТОВ ФОТОДЕЛЕНИЯ ЯДЕР АКТИНИДОВ — ИСТОЧНИКОВ ЗАПАЗДЫВАЮЩЕГО ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ ДЛЯ НУЖД АНАЛИЗА ИХ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА

Представлены результаты моделирования массовых распределений продуктов фотоделения ядер ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu с использованием GEF- кода, и результаты расчетов численных значений отношения выходов легких и тяжелых продуктов (Y_{88}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{138} , Y_{88}/Y_{138} , Y_{89}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{142} , Y_{88}/Y_{142} , Y_{89}/Y_{142}) для указанных ядер. Проведена оценка разницы между численными значениями отношения выходов продуктов для ядерных пар ^{232}Th и ^{235}U , (5.0 ÷ 43.2%), ^{235}U и ^{238}U (14.1 ÷ 39.3%), ^{238}U и ^{239}Pu (14.1 ÷ 31.4%). Результаты моделирования указывают на возможность применения указанных выше пар продуктов деления, как источников запаздывающего гамма-излучения, при проведении неразрушающего изотопного анализа ядерных материалов.

Ключевые слова: ядерные материалы, изотопный анализ, фотоделение, выходы продуктов, запаздывающее гамма-излучение

I.V. Pylypchynets, E.V.Oleynikov, O.O. Parlag

Institute of Electron Physics, Nat. Acad. Sci. of Ukraine, 88017, Uzhhorod, 21 Universitetska str., Ukraine,
e-mail: igor.profi@gmail.com

SIMULATION THE YIELDS OF ACTINIDE NUCLEI PHOTOFISSION PRODUCTS AS SOURCES OF DELAYED GAMMA RADIATION FOR THE NEEDS OF ANALYZING THEIR ISOTOPIC COMPOSITION

Purpose. One of the most important tasks of the nuclear industry is to control the non-proliferation of fissile nuclear materials (for example ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu) at all stages of their use (movement, storage, etc.). To successfully solve this problem, reliable information about their isotopic composition is required. The present study aims to simulate the yields of pairs of photofission products of ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu nuclei, the delayed gamma radiation of which can be used for nondestructive isotopic analysis of nuclear materials at electron accelerators.

Methods. Calculations of the mass distributions of the photofission products of ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu nuclei were carried out using the GEF code. The bremsstrahlung spectrum was simulated during the interaction of electrons ($E = 12.5$ MeV) with a tantalum converter (1 mm) using a GEANT4 10.7.

Results. Simulations of mass distributions of photofission products of ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu nuclei have been carried out. The yields ratios for product pairs (Y_{88}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{135} , Y_{92}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{138} , Y_{88}/Y_{138} , Y_{89}/Y_{138} , Y_{87}/Y_{142} , Y_{88}/Y_{142} , Y_{89}/Y_{142}) are calculated for the indicated cores. Estimates of the difference between the numerical values of the ratio of yields of pairs of fragments for pairs of nuclei ^{232}Th and ^{235}U , ^{235}U and ^{238}U , ^{238}U and ^{239}Pu are made on a percentage basis. The values of the difference in the ratios of the yields of these pairs of products are $-5.0 \div 43.2$ %, $14.1 \div 39.3$ %, and $14.1 \div 39.3$ % for nuclear pairs ^{232}Th and ^{235}U , ^{235}U and ^{238}U , ^{238}U and ^{239}Pu , respectively.

Conclusions. The results of the simulation indicate the possibility of using the above pairs of fission products as sources of delayed gamma radiation when performing nondestructive isotopic analysis of nuclear materials. The results obtained can be used to optimize experiments on electron accelerators, which will improve the accuracy and reliability of the results.

Keywords: nuclear materials, isotope analysis, photofission, product yields, delayed gamma radiation.

REFERENCES

- [1] Gozani T. (1981), «Active non destructive assay of nuclear materials. Principles and applications», [NUREG/CR-0602. SAI MLM 2585. Contract No. FINA 10766. USA. – p. 403.](#)
- [2] Agarwal C., Chaudhury S., Nathaniel T.N., Goswami A. (2012). «Nondestructive assay of plutonium in empty stainless steel boxes by apparent mass method», [Radioanal Nucl Chem – V. 294. – P. 77-80.](#)
- [3] De Stefano R., Carasco C., Pérot B., Simon E., Nicol T., Mauerhofer E. (2019), «Feasibility study of fissile mass detection in 870 L radioactive waste drums using delayed gamma rays from neutron-induced fission», [J Radioanal Nucl Chem– V. 322. – P. 1185-1194.](#)
- [4] Beddingfield D.H., Cecil E.E. (1998), «Identification of fissile materials from fission product gamma-ray spectra», [Nucl. Instr. Meth. A. – V. 417. – P. 405-412.](#)

- [5] DMarrs R.E., Norman E.B., Burkeetal J.T. (2008), «Fission-product gamma-ray line pairs sensitive to fissile material and neutron energy», [Nucl. Instr. Meth. A – V. 592. – P. 463-471.](#)
- [6] Iyengar A., Norman E.B., Howard C., Angell C., Kaplan A., Ressler J.J., Chodash P., Swanberg E., Czeszumska A., Wang B., Yee R., Shugart H.A. (2013), «Distinguishing fissions of ^{232}Th , ^{237}Np and ^{238}U with beta-delayed gamma rays », [Nucl. Instr. Meth. B. – V. 304. – P. 11-15.](#)
- [7] Hollas C.L., Close D.A., Moss C.E. (1987), «Analysis of fissionable material using delayed gamma rays from photofission s», [Nuclear Instruments and Methods in Physics — Research B 24/25 – 503-505.](#)
- [8] HCarrel F., Gmar M., Laine F., Loridon J., Ma J.-L., Passard C. (2006), «Identification of Actinides Inside Nuclear Waste Packages by Measurement of Fission Delayed Gammas», [2006 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record. N28-1. – P. 909-913.](#)
- [9] Carrel F., Agelou M., Gmar M., Lainé F., Loridon J., Ma J.-L., Passard C., Poumarède B. (2010), «Identification and differentiation of actinides inside nuclear waste packages by measurement of delayed gammas», [IEEE Transactions on Nuclear Science. 2010 V. 57, No. 5. – P. 2862- 2871.](#)
- [10] [Decay radiation search. Decay radiation database version of 12/2/2019.](#)
- [11] Schmidt K.-H., Jurado B., Amouroux C., and Schmitt C. (2016), «General Description of Fission Observables: GEF Model Code», [Nuclear Data Sheets – V. 131. – P. 107–221.](#)
- [12] Pylypchynets I.V., Parlag O.O., Oleynikov E.V. (2017), «Simulation the yields of actinide nuclei photofission products induced by bremsstrahlung of electron accelerators», [Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics \[Nauk. Visn. Uzhhorod. Univ. Ser. Fis\]– T-42, pp. 169-1177.](#)
- [13] Bernard D., Serot O., Simon E., Boucher L. and Plumeri S. (2018), «A photofission delayed γ -ray spectra calculation tool for the conception of a nuclear material characterization facility», [EPJ Web of Conferences – V. 170. 06001 5 p.](#)
- [14] [GEANT4 10.7 \(4 December 2020\).](#)
- [15] [Introduction to GEANT4.](#)
- [16] Parlag O.O., Maslyuk V.T., Dovbnya A..M, Pylypchynets I.V., Golovey V.M., Lendel O.I. (2019), «Method of stimulating delayed gamma radiation from fission products of actinide nuclei in sealed stainless steel containers for identification of their isotopic composition» [Sposib stymulyatsiyi zapizniloho hamma-vyprominyuvannya vid produktiv podilu yader aktynidiv v hermetychnykh konteynerakh iz neirzhaviyuchoyi stali dlya identyfikatsiyi yikh izotopnoho skladu], [Ukrainian patent for utility model № 133090](#)
- [17] Evaluated Nuclear Data File (ENDF), [Database Version of 2017-10-27.](#)
- [18] [GEF 2020/1.1.](#)
- [19] Naik H., Kim G.N., Schwengner R., Kim K., John R., Massarczyk R., Junghans A., Wagner A., and Goswami A. (2015), «Fission product yield distribution in the 12, 14, and 16 MeV bremsstrahlung-induced fission of ^{232}Th », [Eur. Phys. J. A 51: 15.](#)
- [20] «Decay Radiation database version of 1/3/2018» (2018), [application access mode: https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/indxdec.jsp](#)

- [21] Jacobs E., Thierens H., De Frenne D., De Clercq A., D'hondt P., De Gelder P., Deruytter A.J. (1980), «Product yields for the photofission of ^{235}U with 12-, 15-, 20-, 30-, and 70-MeV bremsstrahlung», [PRC – V. 21. – P. 237- 245.](#)
- [22] Jacobs E., Thierens H., De Frenne D., De Clercq A., D'hondt P., De Gelder P., and Deruytter A.J. (1980), «Product yields for the photofission of ^{238}U with 12-, 15-, 20-, 30-, and 70-MeV bremsstrahlung», [Physical Review C – V. 19. – P. 422-432.](#)
- [23] Naik H., Carrel F., Kim G.N., Laine F., Sari A., Normand S., and Goswami A. (2013), «Mass yield distributions of fission products from photo-fission of ^{238}U induced by 11.5–17.3 MeV bremsstrahlung », [Eur. Phys. J. A 49: 94.](#)
- [24] England T.R., Rider B.F. (1994), «Endf-349 evaluation and compilation of fission product yields 1993», [Technical Report LA-UR-94-3106, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos New Mexico, USA, – P.1-174.](#)
- [25] [Nuclear Wallet Card Search. Nuclear Wallet Cards database version of 7/10/2019.](#)

©Ужгородський національний університет