

# Интенсивности гамма-излучения $^{235}\text{U}$

Выполнены измерения гамма- и рентгеновского излучений стандартных образцов урана SRM 969 и CRM 146 с использованием HPGe гамма-спектрометров, т.н. "U/Pu Inspector". Получено новое значение интенсивности характеристической линии  $K\alpha_1$  ( $^{231}\text{Th}$ ) 93,35 кэВ из распада  $^{235}\text{U}$  – 4,85(6), которое отличается от ранее принятого 5,76(14) почти на 20 %. Измерены с высокой точностью (~0,5 %) отношения интенсивностей линий  $^{234}\text{Th}$  92,38 и 92,80 кэВ и характеристической линии Th из распада  $^{235}\text{U}$  93,35 кэВ ( $I_{92,38}/I_{93,35}$  и  $I_{92,80}/I_{93,35}$ ), которые используются для измерения степени обогащения урана. Уточнены также интенсивности линий  $^{235}\text{U}$  (в равновесии с  $^{231}\text{Th}$ ) с энергией выше 205 кэВ.

**Ключевые слова:** интенсивности гамма-излучения,  $^{235}\text{U}$ , изотопы урана, измерение, степень обогащения урана, гамма-спектрометрия.

А.Н.Берлизов (МАГАТЭ, г.Вена), В.Н.Даниленко (ООО «ЛСРМ», г.Зеленоград),  
И.В.Кувыкин (ФГУП «ВНИИФТРИ», п.Менделеево), Д.В.Кутний (ННЦ «ХФТИ», г.Харьков)

**Введение.** Точные значения интенсивностей линий гамма-излучения урана необходимы для решения практических задач измерения степени обогащения. Наиболее точным и распространенным гамма-спектрометрическим методом измерения степени обогащения является метод, предложенный R.Gunnink [1]. Он основывается на измерении отношения скоростей счета от гамма-линий 92,38 и 92,80 кэВ  $^{234}\text{Th}$  (в предположении равновесия с  $^{238}\text{U}$ ) и характеристической линии  $K\alpha_1$  (Th) 93,35 кэВ из распада  $^{235}\text{U}$ . Отношения интенсивностей этих линий по данным ENSDF [8] на 2004 г. составляют:

$$\frac{I_{92,38}}{I_{93,35}} = 0,484(45);$$

$$\frac{I_{92,80}}{I_{93,35}} = 0,477(45).$$

Эти отношения использовались для расчета обогащения урана, и их достоверность подтверждается сравнением результатов гамма-спектрометрических измерений с данными масс-спектрометрии [2]. Результаты недавних

Табл.1. Образцы SRM 969.

Название образца	SRM031	SRM071	SRM194	SRM295	SRM446
м.д. $^{235}\text{U}$ , %	0,3166	0,7119	1,942	2,9492	4,4623
м.д. $^{234}\text{U}$ , %	0,002	0,0053	0,0174	0,0284	0,0365
м.д. $^{238}\text{U}$ , %	99,6668	99,2828	98,0406	97,0196	95,495
м.д. $^{236}\text{U}$ , %	0,0146	0,00002	0,0003	0,0033	0,0068
масса, г	200,1	200,1	200,1	200,1	200,1

Табл.2. Образцы CRM 146.

Название образца	CRM20	CRM52	CRM93
м.д. $^{235}\text{U}$ , %	20,107	52,488	93,1703
м.д. $^{234}\text{U}$ , %	0,15	0,37	0,98
м.д. $^{238}\text{U}$ , %	79,55	46,88	5,56
м.д. $^{236}\text{U}$ , %	0,2	0,26	0,29
масса, г	230,01	230,00	230,05

Табл.3. Линии, использованные для расчета эффективности регистрации ниже K-края.

Нуклид	Энергия, кэВ	I (Интенсивность), число гамма-квантов на 100 распадов	$\Delta I$ , число гамма-квантов на 100 распадов	$\Delta\epsilon$ , %
$^{231}\text{Th}$	84,214	6,7	0,07	1,7
	102,270	0,441	0,011	2,5
$^{234}\text{U}$	53,2	0,123	0,002	3
$^{234}\text{Th}$	63,290	3,75	0,08	2,5

измерений интенсивностей линий  $^{234}\text{Th}$  [3], которые отличаются от предыдущих на величину ~30 %, заставляют усомниться в значении интенсивности характе-

ристической линии  $K\alpha_1$  ( $^{231}\text{Th}$ ) 93,35 кэВ из распада  $^{235}\text{U}$ .

Кроме того, недостаточно надежно известны интенсивности линий  $^{235}\text{U}$  в равновесии с  $^{231}\text{Th}$  с

Табл.4. Линии, использованные для расчета эффективности регистрации выше К-края.

Нуклид	Энергия, кэВ	I (Интенсивность), число гамма-квантов на 100 распадов	$\Delta I$ , число гамма-квантов на 100 распадов	$\Delta \epsilon$ , %
$^{235}\text{U}$	143,767	11,00	0,08	0,8
	163,356	4,97	0,04	0,9
	185,715	57,0	0,3	1,0
	205,31	5,01	0,05	1,1
$^{234}\text{U}$	120,900	0,0342	0,0005	6
$^{238}\text{U}$	766,321	0,323	0,004	2
	1001,026	0,847	0,008	1,5
$^{228}\text{Th}$	238,62	42,2	0,556	2,5
	583,191	29,6	0,49	3

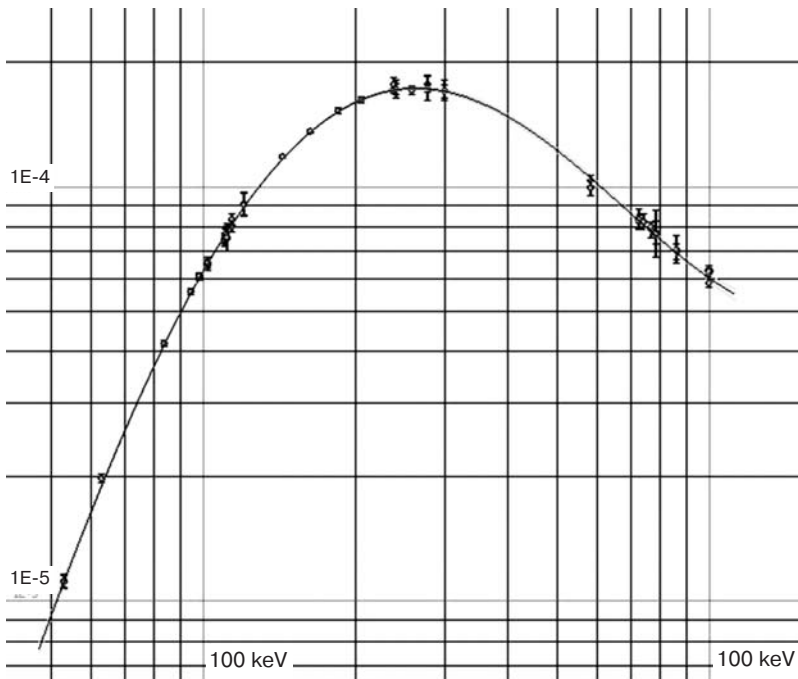


Рис. 1. Аппроксимирующая кривая эффективности регистрации гамма-излучения в диапазоне энергий 50–1000 кэВ с коррекцией на скачок К-края поглощения излучения в образце.

энергиями выше 205 кэВ. Это, на наш взгляд, связано с проблемой учета пиков суммирования от интенсивных линий  $^{235}\text{U}$  +  $^{231}\text{Th}$  с энергиями ниже 205 кэВ.

Целью настоящей работы было:

- уточнение интенсивности характеристической линии  $K\alpha_1$  ( $^{231}\text{Th}$ ) 93,35 кэВ из распада  $^{235}\text{U}$ ;
- измерение отношения интенсивностей линий  $^{234}\text{Th}$  (дочернему  $^{238}\text{U}$ ) 92,38 и 92,80 кэВ и рентгеновской линии  $^{231}\text{Th}$  из распада  $^{235}\text{U}$  93,35 кэВ;

– измерение интенсивности линий  $^{235}\text{U}$  в равновесии с  $^{231}\text{Th}$  с энергиями выше 205 кэВ.

#### Материалы и методы.

**Образцы.** Измерения интенсивностей  $^{235}\text{U}$  были проведены на стандартных образцах Национального бюро стандартов США: Standard Reference Material SRM 969 с концентрацией  $^{235}\text{U}$  (0,32–4,5 %) и Certified Reference Material CRM 146 с концентрацией  $^{235}\text{U}$  (20–93 %), аттестованных по изотопному составу урана с высо-

кой точностью. Детальное описание образцов можно найти в [4].

**Аппаратура.** Измерения были выполнены в ИЯИ (г.Киев) и ХФТИ (г.Харьков) на “U-Pu Inspector” – спектрометрах производства Canberra.

Гамма-спектрометр в ИЯИ состоял из планарного ОЧГ-детектора типа GL1015R площадью 1000 мм<sup>2</sup> и толщиной 15 мм с разрешением FWHM = 560 эВ для энергии 122 кэВ и анализатора Model 1200UPU. Энергетический диапазон составлял 10–305 кэВ.

Гамма-спектрометр в ХФТИ состоял из планарного ОЧГ-детектора типа GL0515R площадью 500 мм<sup>2</sup> и толщиной 15 мм с разрешением FWHM = 580 эВ для энергии 122 кэВ и анализатора Model 1200UPU. Энергетический диапазон составлял 10–1200 кэВ.

Измерения в ИЯИ и ХФТИ проводились на полностью идентичных образцах.

#### Программное обеспечение.

Обработка спектров велась с помощью программного комплекса SpectraLineUltimate компании LSRM для прецизионной обработки сложных гамма-спектров с большим количеством мультиплетов [5]. Особенности комплекса являются:

- адекватное описание гамма-линий, которое обеспечивается алгоритмами, использующими реальную форму аппаратурной линии [6].
- учет лоренцева уширения при описании рентгеновских линий. Данные по естественной ширине линий взяты из [7].
- учет соотношений интенсивностей между линиями одного нуклида при аппроксимации информативных участков спектра.
- одновременная обработка всех информативных участков спектра. На границах информа-

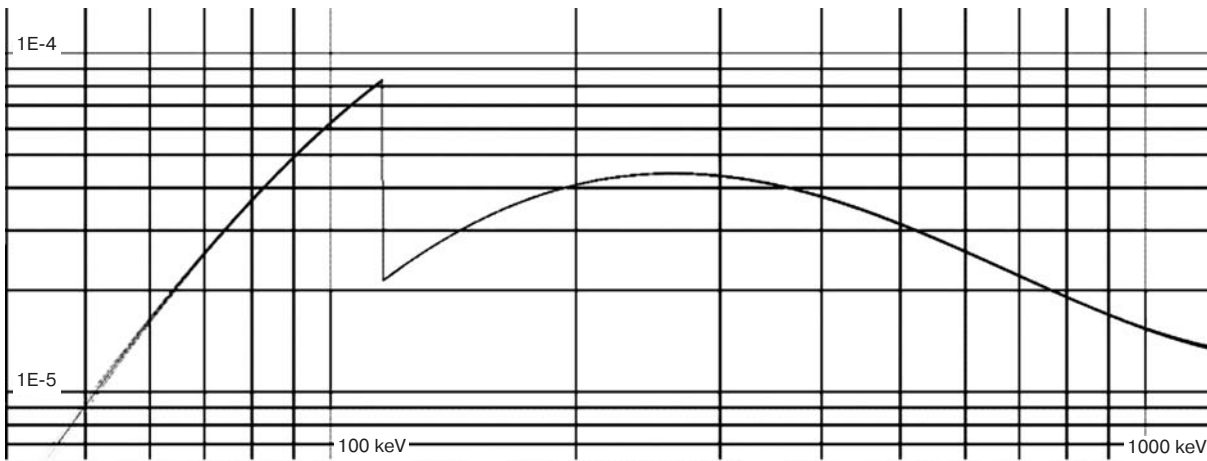


Рис.2. Аппроксимирующая кривая эффективности регистрации гамма-излучения в диапазоне энергий 50–1000 кэВ с выключенной коррекцией на скачок К-края поглощения излучения в образце (Реальная кривая эффективности).

тивных участков фоновые подставки под ними шиваются из условия непрерывности спектра и его 1-й производной.

– учет вклада пиков случайно суммирования.

**Градуировка по эффективности регистрации гамма-излучения.** Точные значения массы образцов и массовых долей содержания изотопов урана позволяют рассчитать референсные значения активности каждого образца.

Эффективность регистрации гамма-излучения рассчитывалась отдельно для каждого типа образцов CRM и SRM из-за отличий в их геометрических размерах и плотностей. Для учета просчетов, обусловленных различной нагрузкой спектрометра для разных образцов, использовалась коррекция «живого» времени всех спектров в одинаковой геометрии. Время набора корректировалось на скорость счета в реперных линиях 63,290 кэВ  $^{238}\text{U}$  для образцов SRM и 185,7 кэВ  $^{235}\text{U}$  для образцов CRM.

$$t_{\text{corr}}^i = t^i \cdot \frac{S^0/A^0}{S^i/A^i}, \quad (1)$$

где  $S$  – скорость счета в пике реперной линии,  $A$  – активность соответствующего нуклида.

Эффективность регистрации гамма-излучения в диапазоне ниже К-края поглощения рассчитывалась по одиночным линиям  $^{231}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{234}\text{Th}$  с использованием референсных значений активности стандартных образцов, рассчитанных из изотопных концентраций урана и массы образцов. Кроме этого использовались относительные значения эффективности регистрации по линиям флуоресценции урана. В табл.3 приведены линии, использованные для расчета эффективности регистрации гамма-излучения, и относительные погрешности эффективности регистрации ( $k = 1$ ).

В области энергий выше К-края эффективность рассчитывалась по линиям  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  с использованием относительной эффективности по линиям  $^{228}\text{Th}$  (табл.4).

Значения интенсивностей линий взяты из данных ENSDF-файла и LNHB [8].

Рассчитанные значения эффективности в области ниже К-края (115,6 кэВ) поглощения корректировались на скачок в массовых коэффициентах поглощения материала образца  $\text{U}_3\text{O}_8$ , который составлял:

$$\frac{\epsilon_{E < 115,6}}{\epsilon_{E > 115,6}} = 3,916. \quad (2)$$

Это позволило аппроксимировать преобразованную эффективность регистрации одним логарифмическим полиномом 4-й степени (рис.1):

$$\lg(\epsilon(E)) = \sum_{i=0}^4 a_i \cdot (\lg(E))^i. \quad (3)$$

Коридор погрешностей кривой эффективности в диапазоне 90–110 кэВ не превышал 1,5 %.

При расчете реальной эффективности регистрации гамма-излучения совершается обратное преобразование на скачок в области ниже К-края (рис.2).

**Расчет интенсивностей гамма-излучения  $^{235}\text{U}$ .** Интенсивность ( $I_i$ )  $i$ -й линии с энергией  $E_i$  рассчитывалась по формуле:

$$I_i = \frac{S_i}{t_{\text{corr}} \epsilon(E_i) A} \cdot 100, \quad (4)$$

где  $S_i$  – площадь этой линии,  $A$  – активность  $^{235}\text{U}$  измеряемого образца,  $\epsilon(E_i)$  – эффективность регистрации.

Для определения интенсивностей использовались спектры высокообогащенных образцов – CRM93 и CRM52. В аппроксимации информативных участков

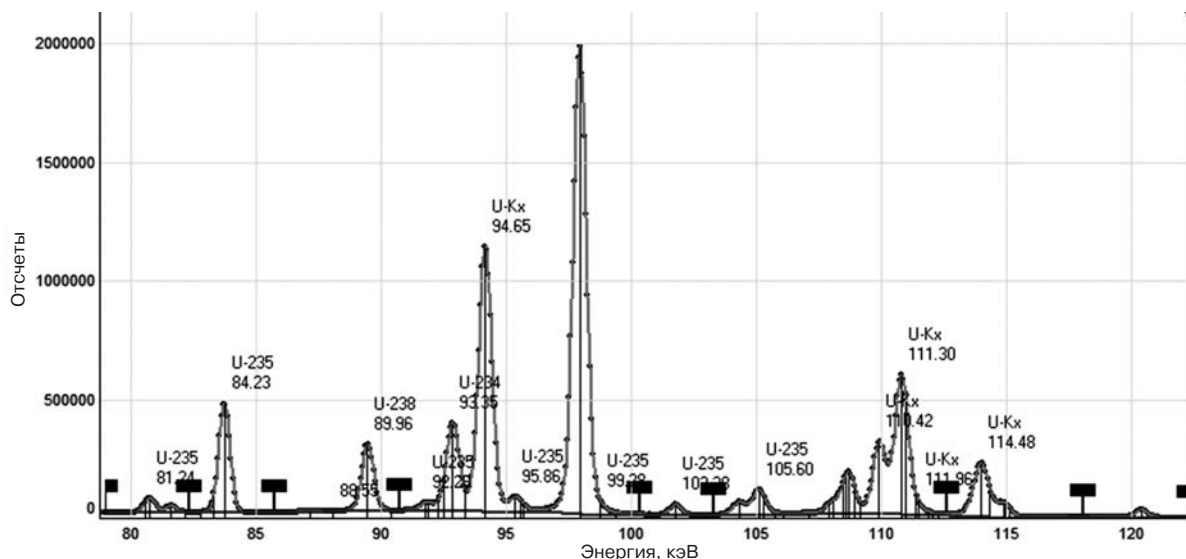


Рис.3. Разметка спектра от образца CRM93.

спектра участвовали все значимые гамма-и рентгеновские линии, предположительно присутствующие в спектре образца. Пример разметки спектра приведен на (рис.3). Как отмечалось выше, при аппроксимации учитывались соотношения интенсивностей для линий одного и того же нуклида. Учет соотношений интенсивностей для измеряемых линий отключался. Полученные в результате аппроксимации площади линий использовались для расчета интенсивностей по формуле (4).

### Результаты.

**Измерение интенсивности линии 93,35 кэВ.** Результаты измерения интенсивности линии 93,35 кэВ, полученные на обоих

спектрометрах, приведены в табл.5.

**Измерение отношений интенсивностей.** Отношения интенсивностей  $^{234}\text{Th}$  92,38 и 92,80 кэВ и характеристической линии Th из распада  $^{235}\text{U}$  93,35 кэВ ( $I_{92,38}/I_{93,35}$  и  $I_{92,80}/I_{93,35}$ ), которые используются для измерения степени обогащения урана, могут быть измерены с большей точностью, чем интенсивности самих линий.

Нормированные на активность скорости счета  $R_i = S_i/A_i$  каждой линии рассчитывались из измерений низкообогащенных образцов SRM на спектрометре GL1015R. Средние значения, рассчитанные по четырем образцам SRM, приведены в табл.6.

Используя отношения эффективностей регистрации, рассчитанные из кривой эффективности

$$\frac{\epsilon(92,38)}{\epsilon(93,35)} = 0,9789(30),$$

$$\frac{\epsilon(92,80)}{\epsilon(93,35)} = 0,9873(18),$$

получим значения отношения интенсивностей линий  $^{238}\text{U}$  ( $^{234}\text{Th}$ ) и  $^{235}\text{U}$ :

$$I_{92,38}/I_{93,35} = 0,4845(15),$$

$$I_{92,80}/I_{93,35} = 0,4997(30).$$

Отметим, что маленькая погрешность отношений эффективности регистрации обусловлена коррелированностью значений кривой эффективности для разных энергий.

**Измерение интенсивности линий  $^{235}\text{U}$  в равновесии с  $^{231}\text{Th}$  с энергиями выше 205 кэВ.** Построенная аппроксимирующая кривая эффективности регистрации гамма-излучения позволяет измерить интенсивности линий  $^{235}\text{U}$  в равновесии с  $^{231}\text{Th}$  в энергетическом диапазоне от 50 до 450 кэВ. Измерение низкоинтенсивных линий  $^{235}\text{U}$  с энергиями выше 220 кэВ осложняется наличием

Табл.5. Результаты измерения  $I_{93,35}$ .

Спектрометр	Образец	$I_{93,35}$
GL1015R	CRM52	4,83(6)
GL1015R	CRM93	4,83(6)
GL0515R	CRM52	4,88(6)
GL0515R	CRM93	4,85(6)
<b>Среднее</b>		<b>4,85(6)</b>

Табл.6. Нормированные скорости счета линий 92,367 и 92,792 кэВ  $^{234}\text{Th}$ .

$S_{92,38}/A_{U238} \cdot 10^{-5}$	$S_{92,80}/A_{U238} \cdot 10^{-5}$	$S_{92,35}/A_{U235} \cdot 10^{-5}$
1,5864(10)	1,650(10)	3,3446(20)

**Табл. 7.** Интенсивности линий 92,38 кэВ, 92,80 кэВ  $^{238}\text{U}$  ( $^{234}\text{Th}$ ) и 93,35 кэВ  $^{235}\text{U}$  и их отношения.

	ENSDF до 2004 и NuDat [9, 10]	ENSDFи NuDat [9, 10]	LNHB 2011/53	Настоящая работа
$I_{92,38}$	2,81(26)	2,13(20)	2,18(19)	2,35(6)
$I_{92,80}$	2,77(26)	2,10(20)	2,15(19)	2,42(6)
$I_{93,35}$	5,81(11)	5,54(14)	5,76(14)	4,85(6)
$I_{92,38}/I_{93,35}$	0,484(45)	0,384(40)	0,370(40)	0,4845(15)
$I_{92,80}/I_{93,35}$	0,477(45)	0,379(40)	0,373(40)	0,4997(30)

пиков случайного суммирования от высокоинтенсивных линий  $^{235}\text{U}$ . Специальная процедура в ПО SpectraLineUltimate позволяет рассчитать энергии и площади пиков случайного суммирования и тем самым учесть их вклад в площади измеряемых линий. Контроль корректности учета эффектов суммирования осуществлялся по пику сумм 371 кэВ (185,7+185,7 кэВ). Результаты измерения интенсивности этих линий приведены в табл.8.

Интенсивности характеристического излучения рассчитаны с использованием значения интенсивности для линии  $K\alpha_1$  93,35 кэВ Th  $I_{93,95} = 4,85$  и относительных интенсивностей флуоресценции Th из [8].

**Обсуждение результатов.** Результатом работы является новое значение интенсивности характеристической линии  $K\alpha_1$  ( $^{231}\text{Th}$ ) 93,35 кэВ из распада  $^{235}\text{U}$  – 4,85(6), которое отличается от ранее при-

нятого 5,76(14) почти на 20 %. Причины такого расхождения нам не ясны. Следует только отметить, что предыдущее значение было получено расчетным путем.

Измерены с высокой точностью (~0,5 %) отношения интенсивностей линий  $^{234}\text{Th}$  92,38 и 92,80 кэВ и характеристической линии Th из распада  $^{235}\text{U}$  93,35 кэВ ( $I_{92,38}/I_{93,35}$  и  $I_{92,80}/I_{93,35}$ ), которые используются для измерения степени обогащения урана.

Измерены интенсивности линий  $^{235}\text{U}$  (в равновесии с  $^{231}\text{Th}$ ) выше 205 кэВ, литературные данные по которым имеют большой разброс. Этот разброс, на наш взгляд, обусловлен неучетом или некорректным учетом вклада в спектр пиков случайного суммирования.

**Табл. 8.** Интенсивности гамма-излучения  $^{235}\text{U}$  и  $^{231}\text{Th}$ .

E, keV	Интенсивность, кванты на 100 распадов		E, keV	Интенсивность, кванты на 100 распадов	
	[9] LNHB 2011/53	Наст. работа		[9] LNHB 2011/53	Наст. работа
58,57	0,477(6)	0,471(7)	202,11	1,08(2)	1,09(1)
74,94	0,051(6)	0,036(9)	205,31	5,02(3)	5,01(5)
89,95	1,01(3)	1,02(3)	215,28	0,029(3)	0,0295(5)
89,957	3,56(9)	3,04(6)	221,38	0,118(5)	0,116(10)
92,288	0,37(4)	0,41(4)	228,78	0,0074(4)	0,070(2)
93,351	5,76(14)	4,85(6)	233,5	0,038(4)	0,0287(4)
95,869	0,59(7)	0,69(7)	240,87	0,074(4)	0,067(1)
96,09	0,091(11)	0,093(9)	246,84	0,055(3)	0,054(1)
99,278	0,137(6)	0,149(12)	266,47	0,0078(6)	0,060(3)
104,819	2,06	0,606(18)	275,35	0,051(6)	0,0153(4)
105,604		1,16(3)	275,49	0,032	
106,239		0,0411(19)	275,4(sum)	0,083	
108,582	0,685	0,443(13)	281,42	0,0063	0,039(5)
108,955		0,0119(5)	282,94	0,0063	0,043(5)
109,442		0,097(6)	289,56	0,0074	0,004(2)
109,18	1,66(13)	1,45(3)	291,65	0,040(6)	0,019(2)
115,45	0,03(1)	0,03(1)	301,7	0,0053	0,0022(3)
194,94	0,63(1)	0,63(4)	345,9	0,04	0,034(5)
198,9	0,036(2)	0,044(2)	387,84	0,04(6)	0,037(3)

**Литература**

1. R.Gunnink, et al., UCRL-JC-114713, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, USA, 1994.
2. A.N.Berlizov, R.Gunnink, J.Zsigrai, C.T.Nguyen, V.V.Tryshyn, NIM A 575 (2007), p.498.
3. Abousahl, S.; van Belle, P.; Lynch, B.; Ottmar, H., New Measurement of the Emission Probability of the 63.290 keV  $^{234}\text{Th}$  Gamma Ray from  $^{238}\text{U}$  Alpha Decay. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research A 517 (2004) 211-218.
4. A.N.Berlizov, V.V. Tryshyn, Sci. Pap. Inst. Nucl. Res. 2 (2000) 86, A.N.Berlizov, V.V.Tryshyn, in: Proceedings of IAEA Symposium on International Safeguards, Vienna, Austria, 29 October – 1 November 2001, IAEA-SM-367/CD.
5. [http://lsrm.ru/products/detail.php?ELEMENT\\_CODE=SpectraLineUltimate](http://lsrm.ru/products/detail.php?ELEMENT_CODE=SpectraLineUltimate).
6. В.Б.Злоказов. Метод для автоматического поиска пиков в гамма-спектрах. Дубна, препринт. ОИЯИ, 1981.
7. Блохин М.А., Швейцер И.Г. Рентгеноспектральный справочник. М.: Наука, 1982.
8. Note techniqueLNHB2011/53 Table of RADIONUCLIDES. <http://www.nucleide.org>.
9. Nuclear structure & decay Data <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2>.
10. Evaluated nuclear structure and decay data in a standard format <http://www.nndc.bnl.gov/ensdf>.

**Yields of Gamma Radiation  $^{235}\text{U}$** 

Berlizov Andrey (IAEA, Vienna, Austria), Danilenko Vladimir ("LSRM" Ltd, Moscow, Russia), Kuvykin Ilya (FSUE "VNIIFTRI", Moscow, Russia), Kutnii Dmitriy (NSC "KIPT", Kharkov, Ukraine)

**Abstract.** The measurements of gamma and X-ray radiation of SRM 969 and CRM 146 standard uranium samples have been performed using HPGe gamma spectrometers, so called "U/Pu Inspector". The new value of 4,85(6) of the yield of  $^{231}\text{Th}$   $K\alpha_1$  characteristic line of 93,35 keV of  $^{235}\text{U}$  decay has been obtained which differs from the previously-agreed value of 5,76(14) for the more than 20 %. The yields ratios of  $^{234}\text{Th}$  lines of 92,38 and 92,80 keV and Th characteristic line of  $^{235}\text{U}$  decay of 93,35 keV ( $I_{92,38}/I_{93,35}$  and  $I_{92,80}/I_{93,35}$ ), used for measurement of uranium enrichment degree, have been measured with high accuracy (~0,5 %). The yields of  $^{235}\text{U}$  lines (in equilibrium with  $^{231}\text{Th}$ ) with energy more than 205 keV have been measured with greater accuracy.

**Key words:** *gamma radiation yields,  $^{235}\text{U}$ , uranium isotopes, measurement, uranium enrichment degree, gamma spectrometry.*

А.Н.Берлизов (к.ф.-м.н., с.н.с., инж.) – МАГАТЭ, г.Вена; В.Н.Даниленко (к.ф.-м.н., с.н.с., ген.дир.) – ООО «ЛСРМ», г. Зеленоград; И.В.Кувыкин (к.ф.-м.н., с.н.с., нач.лаб.) – ФГУП «ВНИИФТРИ», п.Менделеево; Д.В.Кутний (к.т.н., рук.служ.) – ННЦ «ХФТИ», г. Харьков.

Контакты: тел.: 7 (495) 660-16-14; e-mail: danilenko@lsrm.ru.