

ПРИЧИНЫ ЖЕСТКОГО ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ В ЦЕПОЧКЕ РАСПАДА ^{232}U , ЗАЩИЩАЮЩЕЙ УРАН ОТ НЕКОНТРОЛИРУЕМОГО ИСПОЛЬЗОВАНИЯ

Г.Г. Куликов*, А.Н. Шмелёв**, В.А. Апсэ**, Е.Г. Куликов**

* Госкорпорация «Росатом»

119017, г. Москва, ул. Большая Ордынка, 24

** НИЯУ МИФИ

115409, г. Москва, Каширское ш., 31



Цель работы – показать ядерно-физические причины жёсткого гамма-излучения в цепочке распада урана-232, предложить тактику обращения с ураном, содержащим уран-232, и оценить величину его защитного гамма-барьера от неконтролируемого использования урана.

Показана общая картина распадов цепочки нуклидных превращений урана-232, на которых основана защита урана от его неконтролируемого использования. При распаде ядер испускание ими α - или β -частиц является лишь первым этапом сложнейшего процесса перестройки как внутренней структуры самого ядра, состоящей в перестройке нейтронных и протонных оболочек и уровня его возбуждения, так и в перестройке электронных оболочек атома. Как правило, дочернее ядро оказывается в сильно возбуждённом состоянии, которое снимается испусканием жёстких γ -квантов и электронов внутренней конверсии. После второго случая оставшееся возбуждение атома снимается испусканием характеристических γ -квантов и Оже-электронов с характеристическими γ -квантами.

Объяснены квантово-механические причины жёсткого γ -излучения таллия-208 и висмута-212, завершающих цепочку распада урана-232.

Предложена тактика обращения с ураном, содержащим уран-232. Поскольку жёсткие γ -кванты таллия-208 и висмута-212 появляются лишь в конце цепочки распада урана-232, то после химической очистки урана-232 от продуктов его распада сам уран-232 не представляет радиационной опасности, поэтому в это время целесообразно провести с ним все необходимые операции по транспортировке материала на завод, изготовлению топлива на основе урана, содержащего уран-232, а также перевозке топлива на ядерную установку, где топливо будет использоваться.

Ключевые слова: жёсткое гамма-излучение, цепочка нуклидных превращений урана-232, защищённость урана.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время допустимое содержание урана-232 в уране из облученного ядерного топлива ограничено при обращении с ним в перчатках чрезвычайно малой величиной, по разным данным от 0.2 до 1 миллионной доли процента из-за жёсткого гамма-

© Г.Г. Куликов, А.Н. Шмелёв, В.А. Апсэ, Е.Г. Куликов, 2022

излучения в цепочке его распада. Желательно определить ядерно-физические причины возникновения жёсткого гамма-излучения, а также предложить тактику обращения с ураном, содержащим уран-232, которая, с одной стороны, позволяла бы надежно защитить уран от его неконтролируемого распространения, а с другой стороны, не налагала бы значительных требований по защите персонала при обращении с ним. Традиционно специалисты по ядерным реакторам лишь используют характеристики цепочки распада в качестве исходных данных для своих исследований. Данная работа показывает ядерно-физические причины возникновения этих характеристик, т.е. «перебрасывает мостик» между ядерной физикой и физикой ядерных реакторов, что полезно для специалистов по ядерным реакторам.

СХЕМА И ХАРАКТЕРИСТИКИ ЦЕПОЧКИ РАСПАДА УРАНА-232

На рисунке 1 показана цепочка распада радиоактивного урана-232 в стабильный свинец-208. В цепочке находятся семь нуклидов, испытывающих α -распад, и три нуклида, испытывающих β -распад. Все распады (кроме α -распада полония-212) сопровождаются испусканием γ -излучения, а также электронов различной природы.

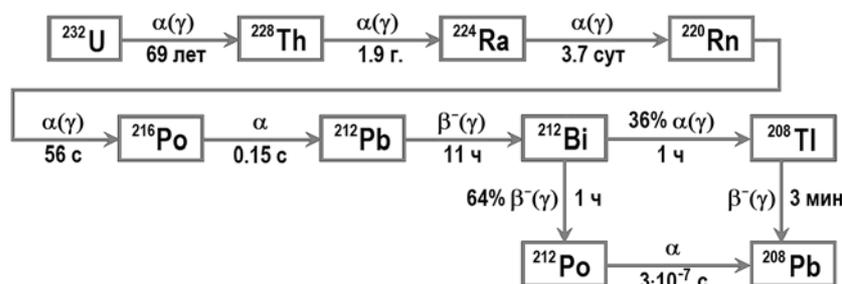


Рис. 1. Цепочка распада U-232

В таблице 1 приведены характеристики цепочки распада урана-232, полученные из национального центра ядерных данных Брукхейвенской национальной лаборатории США [1], которая специализируется в области ядерной физики. В таблице показаны наиболее вероятные излучения. Жирным шрифтом в таблице приведено излучение, характеризующееся наиболее высокими энергией и вероятностью испускания.

Рассмотрим физические процессы, приводящие к испусканию различного излучения. Процессы α - или β -распада часто сопровождаются дополнительным излучением. В частности, после распада образовавшееся ядро часто оказывается в возбуждённом состоянии, которое может сниматься испусканием ядром γ -квантов высокой энергии.

Однако это не единственный процесс снятия возбуждения ядра. Ядро может передать энергию возбуждения одному из атомных электронов посредством квантово-механических процессов. В результате ядро переходит в основное (невозбуждённое) состояние, а из электронной оболочки атома высвобождается возбужденный электрон, который называется электроном внутренней конверсии. Таким образом, снятие возбуждения ядра через процесс внутренней конверсии происходит без испускания γ -квантов. Поскольку энергии возбуждения ядра и энергии связи электронов в оболочках атомов – это дискретные величины, то и кинетическая энергия электронов внутренней конверсии тоже дискретная величина, которая определяется по формуле

$$E(\text{электрон внутренней конверсии}) = E(\text{возбуждение ядра}) - E(\text{связь электрона}).$$

В результате испускания электрона внутренней конверсии ядро атома переходит в основное (невозбуждённое) состояние, однако атом остается возбуждённым, так как в одной из его электронных оболочек не хватает электрона, испущенного при внутренней конверсии. Вакансия заполняется электроном с более удалённой (внешней) электронной

оболочки практически мгновенно (за время порядка $1 \cdot 10^{-15}$ с). При этом испускается так называемый характеристический γ -квант. Его энергия дискретна и равна разности энергий связи между вакантной и внешними электронными оболочками атома:

$$E(\text{характеристический } \gamma\text{-квант}) = E(\text{вакансия}) - E(\text{внешняя оболочка}).$$

Такое гамма-излучение называется характеристическим, поскольку спектр испускаемых γ -квантов дискретен и соответствует структуре электронных оболочек атома, т.е. полностью определяется этой структурой, а поэтому может служить для определения элемента, которым оно было испущено.

Таблица 1

Характеристики цепочки распада U-232

Нуклид	Распад, $T_{1/2}$	Энергия распада, МэВ	Наиболее вероятное излучение, МэВ (%)		
			Частицы (%)	γ -излучение*)	Электроны**)
U-232	α , 68.9 г.	5.414	5.263 (31.55)	0.013 (10.9)	0.009 (12.0)
			5.320 (68.15)	0.058 (0.20)	0.037 (22.79) 0.053 (6.22)
Th-228	α , 1.91 г.	5.521	5.340 (26.0)	0.012 (8.4)	0.009 (10.2)
			5.423 (73.4)	0.084 (1.19)	0.065 (18.5) 0.080 (5.04) 0.083 (1.65)
Ra-224	α , 3.66 сут	5.789	5.449 (5.06)	0.012 (0.37)	0.009 (0.5)
			5.685 (94.92)	0.241 (4.1)	0.143 (0.46) 0.223 (0.5)
Rn-220	α , 55.6 с	6.405	6.288 (99.89)	0.550 (0.11)	
Po-216	α , 0.144 с	6.906	6.778 (99.998)	0.805 (0.002)	0.717 (2E-5)
Pb-212	β , 10.62 ч	0.569	0.041 (5.01)	0.011 (13.7)	0.008 (21.3)
			0.093 (83.5)	0.075 (9.9)	0.148 (31.0)
			0.171 (13.7)	0.077 (16.4)	0.210 (1.25)
				0.239 (43.6)	0.222 (7.02)
Bi-212	α , 60.55 мин 35.94%	6.207	6.051 (25.13)	0.010 (7.0)	0.008 (12.1)
			6.090 (9.75)	0.040 (1.06)	0.025 (18.9) 0.036 (4.4)
Bi-212	β , 60.55 мин 64.06%	2.252	0.834 (55.37)	0.727 (6.67)	0.634 (0.13)
				0.785 (1.10)	
				1.079 (0.56)	
				1.513 (0.29) 1.621 (1.47)	
Po-212	α , 0.299 мкс	8.954	8.785 (100)		
Tl-208	β , 3.053 мин 35.94%	4,999	0.343 (3.18)	0.511 (22.6)	0.423 (1.90)
			0.442 (24.2)	0.583 (85.0)	0.495 (1.70)
			0.535 (22.2)	0.861 (12.5)	0.567 (0.46)
			0.649 (49.1)	2.615 (99.754)	2.527 (0.21)

*) Характеристическое и жёсткое γ -излучение

**) Электроны внутренней конверсии и Оже-электроны

После испускания электрона внутренней конверсии атом может снять своё возбуждение и без испускания γ -кванта. При заполнении электронной вакансии выделенная энергия может быть передана электрону другого вышележащего уровня, что переведет его в возбуждённое состояние. Процесс передачи энергии до сих пор не определён. Если переданная энергия больше, чем его энергия связи, то возбуждённый электрон покинет атом, т.е. атом испустит Оже-электрон. Поскольку все энергетические уровни атомных электронов дискретны, то и кинетическая энергия Оже-электрона тоже дискретна и

вычисляется по формуле

$$E(\text{Оже-электрон}) = E(\text{вакансия}) - E(\text{внешняя оболочка}) - E(\text{связи}),$$

где $E(\text{связи})$ – энергия связи электрона на оболочке, с которой вылетел Оже-электрон. В результате в атоме вместо одной первичной электронной вакансии возникают две новые вакансии, но на более высоких уровнях энергии, т.е. атом оказывается дважды ионизированным, а значит, по-прежнему в возбуждённом состоянии. Для окончательного снятия возбуждения в атоме происходят электронные переходы с испусканием характеристических γ -квантов и присоединением к атому недостающих электронов. В таблице 1 приведены энергии и выходы всех видов рассмотренных излучений.

Таким образом, на примере цепочки распада урана-232 видно, что при распаде ядер испускание ими α - или β -частиц является лишь первым этапом сложнейшего процесса перестройки как внутренней структуры самого ядра, состоящей в перестройке нейтронных и протонных оболочек и уровней его возбуждения, так и в перестройке электронных оболочек атома. Как правило, дочернее ядро оказывается в сильно возбуждённом состоянии, которое снимается испусканием жестких γ -квантов и электронов внутренней конверсии. После второго случая оставшееся возбуждение атома снимается испусканием характеристических γ -квантов и Оже-электронов с характеристическими γ -квантами. Схема испускания различного излучения показана на рис. 2.

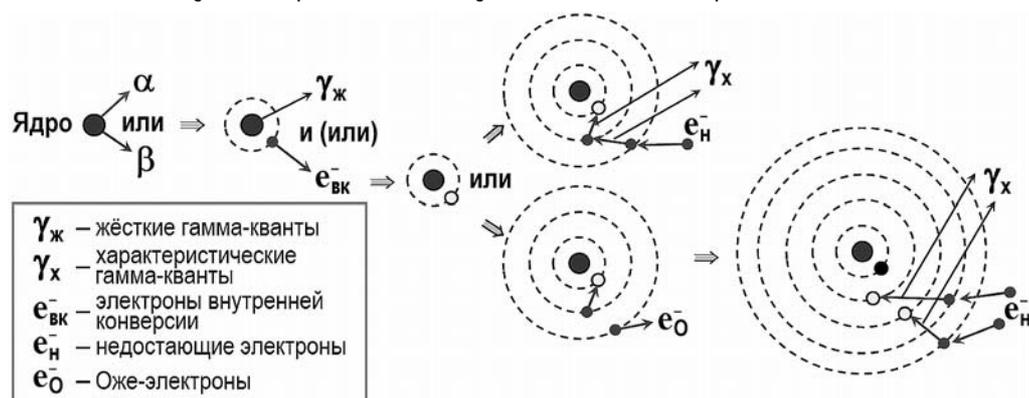


Рис. 2. Схема распада ядра

Видно, что энергия сопутствующего γ -излучения колеблется от нескольких десятков кэВ до нескольких МэВ. Отметим, что наиболее жёсткие γ -кванты с энергией 2.615 МэВ испускаются таллием-208, причем выход этого излучения велик, составляя почти 100%. Последнее означает, что практически каждый β -распад таллия-208 сопровождается испусканием γ -кванта высокой энергии 2.615 МэВ. Кроме того, распад таллия-208 сопровождается испусканием хотя и менее жёсткого, но тем не менее сравнительно высокоэнергетического γ -излучения с энергией 0.583 МэВ с существенным выходом 85%.

Поскольку таллий-208 образуется в 36% случаях α -распада висмута-212 (рис. 1), который является дочерним продуктом распада урана-232, то можно утверждать, что 36% распада урана-232 приводит к испусканию примерно пары жёстких γ -квантов с энергиями 2.615 и 0.583 МэВ (вероятность последнего немного меньше 100%, составляя 85%). Можно ещё отметить жёсткие γ -кванты, сопутствующие β -распаду висмута-212 (1.513 и 1.621 МэВ), однако их выходы существенно меньше, 0.29 и 1.47% соответственно.

КВАНТОВО-МЕХАНИЧЕСКИЕ ПРИЧИНЫ ЖЕСТКОГО ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ ТАЛЛИЯ-208

Выясним причины столь аномально жёсткого (2.615 МэВ) γ -излучения с большой

вероятностью (почти 100%). На рисунке 3 показана упрощённая схема β -распада материнского ядра таллия-208.

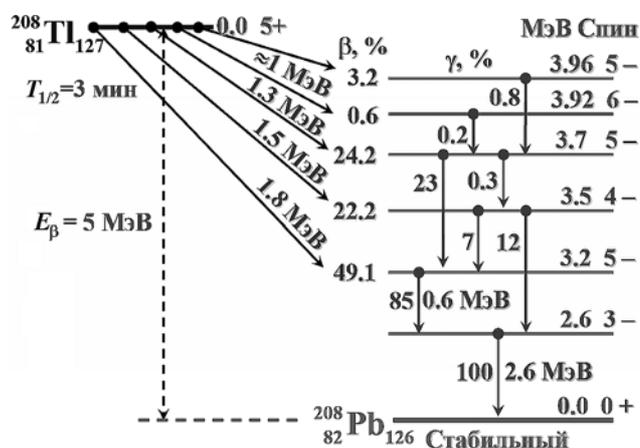


Рис. 3. Упрощённая схема β -распада Tl-208.

Распад ядра таллия-208 происходит из основного, т.е. невозбуждённого состояния (на рисунке обозначено как «0.0»), характеризующегося спином 5 и чётной волновой функцией (обозначено как «5+»), в основное состояние дочернего стабильного ядра свинца-208, которое описывается чётной волновой функцией (обозначено как «0.0 0+»). Для краткости волновую функцию часто называют пси-функцией или ψ -функцией. Ядро таллия-208 является нечётно-нечётным, т.е. в нем нечётное число протонов (81) и нейтронов (127). Такие ядра являются непрочными, т.е. характеризуются пониженной энергией связи на один нуклон (протон и нейтрон), составляющих ядро. В то же время у ядра свинца-208 не только чётное число протонов (82) и нейтронов (126), но все нуклонные оболочки замкнуты. Это так называемое дважды магическое ядро. Таких ядер в природе существует всего пять – это $^2\text{He-4}$, $^8\text{O-16}$, $^{20}\text{Ca-40}$, $^{28}\text{Ca-48}$, $^{126}\text{Pb-208}$. Они чрезвычайно прочные, т.е. обладают повышенной энергией связи каждого нуклона. Именно поэтому энергия β -распада, т.е. разница между основными состояниями таллия-208 и свинца-208 составляет огромную величину ~ 5 МэВ.

Кроме того, дважды магические ядра характеризуются чрезвычайно высоким первым уровнем возбуждения и большими энергетическими расстояниями между последующими уровнями возбуждения. Так у свинца-208 первый уровень возбуждения составляет значительную величину, около 2.6 МэВ, а следующие два уровня примерно 3.2 и 3.5 МэВ. Затем они уже сгущаются, т.е. располагаются сравнительно близко друг от друга. Теория β -распада разработана на основе квантовой механики. Согласно этой теории, β -распад является слабым взаимодействием, оно слабее ядерного и электромагнитного взаимодействия примерно на 13 и 11 порядков соответственно, но на 25 порядков сильнее гравитационного. Радиус действия слабого взаимодействия примерно на три порядка меньше, чем даже короткодействующего ядерного взаимодействия, составляя около $1 \cdot 10^{-18}$ м. Вероятность распада материнского ядра в конкретное состояние дочернего ядра, который часто называется переходом, рассчитывается на основе волновых функций ядер в этих состояниях с учётом их спинов и чётности ψ -функций. Причем, чем больше разница спинов между материнским и дочерним ядром, тем меньше вероятность перехода. Изменение чётности волновой функции при переходе также уменьшает вероятность перехода. В результате можно составить табл. 2, описывающую вероятность различных переходов. В таблице величина изменения спина при переходе рассчитывается как модуль их разности в исходном и конечном состояниях, знак плюс означает, что чётность ψ -функции не изменилась, а знак минус означает, что чётность ψ -функции из-

менилась. К сожалению, теория дает не точное значение вероятности конкретного перехода, а лишь примерную его оценку, т.е. тенденцию в изменении вероятностей при сравнении различных переходов, которая на практике может и нарушаться.

Таблица 2

Вероятности переходов при β -распаде

Величина изменения спина и четности Ψ -функции при переходе	Название перехода	Вероятность перехода
0+	Сверхразрешённый	Наибольшая
1+	Разрешённый	Очень большая
0– и 1–	Первый запрещённый неуникальный	Большая
2–	Первый запрещённый уникальный	Небольшая
2+	Второй запрещённый неуникальный	Средняя
3+	Второй запрещённый уникальный	Низкая
3–	Третий запрещённый неуникальный	Очень низкая

Из рисунка 2 видно, что переход из основного состояния таллия-208 в основное состояние свинца-208 соответствует очень большому изменению спина ($|5 - 0| = 5$), хотя и без изменения чётности ψ -функции, поэтому такой переход настолько маловероятен, что практически не реализуется. Переход таллия-208 в первый уровень возбуждения свинца-208 также соответствует значительному изменению спина ($|5 - 3| = 2$) и изменению чётности ψ -функции с чётной (+) на нечётную (–). Согласно табл. 2, это случай «2–», т.е. первый запрещённый уникальный переход, вероятность которого невелика, поэтому он также не реализуется. Наконец, переход таллия-208 во второй уровень возбуждения свинца-208 проходит без изменения спина ($|5 - 5| = 0$), но с изменением чётности ψ -функции с чётной (+) на нечётную (–), т.е. согласно табл. 2 обозначается как «0–» и называется первый запрещённый неуникальный переход, вероятность которого большая, поэтому он реализуется примерно в половине случаев β -распада (49.1%). После чего испускаются два γ -кванта с большими энергиями ~ 0.6 и ~ 2.6 МэВ. В целом, энергия β -распада (5 МэВ) выделяется в результате испускания одной β -частицы с энергией примерно от 1 до 1.8 МэВ и последующего испускания серии γ -квантов энергий от 0.3 до 2.6 МэВ, а также электронов внутренней конверсии и Оже-электронов.

Таким образом, сверхжесткое проникающее γ -излучение является результатом огромной энергии β -распада (5 МэВ), которую, согласно законам квантовой механики, β -частица унести не может, а первые два уровня возбуждения дважды магического ядра свинца-208 расположены очень высоко. Эти высокоэнергетические возбуждения и снимаются испусканием γ -квантов высокой энергии (~ 0.6 и ~ 2.6 МэВ) с большой вероятностью (~ 85 и $\sim 100\%$ соответственно). Все вышеприведенные рассуждения было удобно провести на упрощенной схеме β -распада таллия-208 (рис. 3). Для более полного представления о всей сложности этого процесса можно ознакомиться с полной схемой β -распада таллия-208 в [1].

РАСПАД ВИСМУТА-212

В результате β -распада висмута-212 [1] испускается пара жёстких γ -квантов с энергиями 1.621 и 1.513 МэВ. Однако вероятность их испускания существенно меньше, чем у таллия-208, составляя лишь 1.47 и 0.29% соответственно.

Это объясняется тем, что спины исходного ядра висмута-212 и конечного ядра полония-212 совпадают, составляя величину 0, а энергия β -распада (2.252 МэВ) не столь велика, поэтому её может унести β -частица. В результате большая часть β -распадов

осуществляется в основное состояние полония-212 вообще без γ -излучения. Однако у полония-212 первые три уровня возбуждения характеризуются спинами, которые незначительно отличаются от спина висмута-212 (0), составляя 1+ (третий уровень) и 2+ (первый и второй уровни), и довольно высокой энергией возбуждения. Поэтому β -распад висмута-212 всё же сопровождается испусканием γ -квантов с энергией 1.621 МэВ с вероятностью 1.47%, которое соответствует изменению спина ядер на величину 1 и испусканием γ -квантов с энергией 1.513 МэВ с меньшей вероятностью 0.29%, т.к. это соответствует большему изменению спина ядер на величину 2 [2].

ТАКТИКА ОБРАЩЕНИЯ С УРАНОМ, СОДЕРЖАЩИМ УРАН-232

Исходя из последовательности и периодов полураспада нуклидов, входящих в цепочку распада урана-232, видно, что жёсткие γ -кванты таллия-208 и висмута-212 со значительным выходом появляются лишь в конце цепочки распада. Это означает, что после химической очистки урана-232 от продуктов его цепочки распада сам уран-232 не представляет опасности с точки зрения проникающего жёсткого γ -излучения [3, 4].

Именно в это время целесообразно провести с ним все необходимые операции по транспортировке материала на завод, изготовлению топлива на основе урана, содержащего уран-232, а также перевозке топлива на ядерную установку, где топливо будет использоваться. Чем быстрее это сделать, тем более безопасным будет уран в обращении. На основании данных следующего раздела, период безопасного обращения с ураном-232 может составлять около одного года.

СОЗДАНИЕ ЗАЩИТНОГО ГАММА-БАРЬЕРА ДЛЯ УРАНА, СОДЕРЖАЩЕГО УРАН-232

Для создания радиационного барьера в виде жёсткого γ -излучения желательно выдержать свежее урановое топливо, содержащее уран-232, в течение нескольких лет, за которые цепочка распада урана-232 придёт в равновесие по накопившимся в ней γ -излучающими таллием-208 и висмутом-212. Это подтверждается зависимостью скорости набора дозы от урана-232 и его дочерних нуклидов со временем выдержки урана-232, которое приведено на рис. 4.

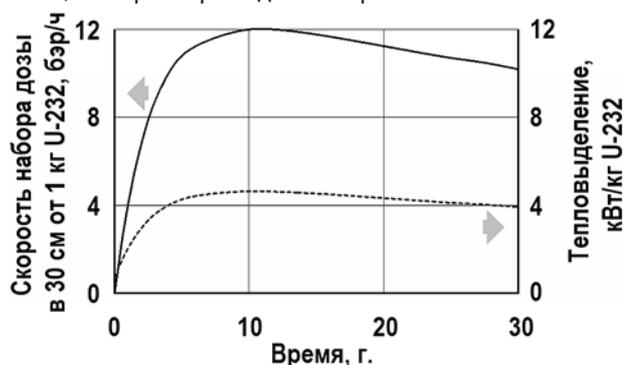


Рис. 4. Скорость набора дозы и тепловыделение U-232 в зависимости от времени его выдержки

Видно, что максимальное значение этой величины достигается после ~ 10-ти лет выдержки урана-232, а затем медленно уменьшается на протяжении нескольких десятилетий. Таким образом, эта защита от несанкционированного распространения является долговременной, что легко объяснимо, учитывая, что период полураспада урана-232 составляет почти 70 лет.

Загрузка ВВЭР-1000 по урану составляет примерно 66 т в 163-х тепловыделяющих сборках, т.е. около 405 кг урана в одной сборке. В перспективном топливе предполагается 5%-ное обогащение по урану-235. Для простоты оценки примем экви-

валентность размножающих свойств урана-235 и урана-233, хотя в тепловом спектре размножающие свойства урана-233 лучше, чем у урана-235. Тогда содержание урана-233 в сборке составит около 20 кг. Ранее было оценено, что содержание урана-232 может достигать ~ 1% в уране-233, нарабатываемом в ториевом бланкете термоядерной установки при облучении тория в течение ~ 500 суток [5 – 9]. В этом случае в сборке будет около 0.2 кг урана-232 [10, 11].

На рисунке 4 приведена скорость набора дозы от 1 кг урана-232. Видно, что для оценки дозы от сборки надо уменьшить значения, показанные на рисунке, в пять раз. Если злоумышленники захотят вручную извлечь из сборки уран, который содержит 5% урана-233 с 1% в нём урана-232, выдержанного в течение 10 лет, то скорость набора дозы от сборки составит 2400 бэр/ч (бэр – биологический эквивалент рентгена). Отметим, что летальная доза составляет 450 бэр. Следовательно, смертельную дозу злоумышленники получают примерно за 11 минут. Это существенная радиационная защита от несанкционированного распространения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показана общая картина распадов цепочки нуклидных превращений урана-232, на которых основана защита урана от его неконтролируемого использования. При распаде ядер испускание ими α - или β -частиц является лишь первым этапом сложнейшего процесса перестройки как внутренней структуры самого ядра, состоящей в перестройке нейтронных и протонных оболочек и уровней его возбуждения, так и в перестройке электронных оболочек атома. Как правило, дочернее ядро оказывается в сильно возбуждённом состоянии, которое снимается испусканием жёстких γ -квантов и электронов внутренней конверсии. После второго случая оставшееся возбуждение атома снимается испусканием характеристических γ -квантов и Оже-электронов с характеристическими γ -квантами.

Объяснены квантово-механические особенности схем распада таллия-208 и висмута-212 в цепочке распада урана-232, которые приводят к жёсткому γ -излучению. Оценено, что 36% распадов урана-232 приводит к испусканию пары жёстких γ -квантов, сопровождающих β -распад таллия-208 с энергиями 2.615 и 0.583 МэВ с вероятностями 100 и 85% соответственно, а в остальных 64% распадов урана-232 испускается еще одна пара жёстких γ -квантов, сопровождающих β -распад висмута-212 с энергиями 1.621 и 1.513 МэВ с вероятностями 1.47 и 0.29% соответственно.

Предложена тактика обращения с ураном, содержащим уран-232. Поскольку жёсткие γ -кванты таллия-208 и висмута-212 появляются лишь в конце цепочки распада урана-232, то после химической очистки урана-232 от продуктов его распада сам уран-232 не представляет радиационной опасности, поэтому в это время целесообразно провести с ним все необходимые операции по транспортировке материала на завод, изготовлению топлива на основе урана, содержащего уран-232, а также перевозке топлива на ядерную установку, где топливо будет использоваться. Чем быстрее это сделать, тем более безопасным будет уран в обращении. Оценено, что период безопасного обращения с ураном-232 может составлять около одного года после его очистки от продуктов распада.

Благодарность

Исследование выполнено за счёт гранта Российского фонда фундаментальных исследований (договор № 19-29-02006/19).

Авторы выражают благодарность сотруднику кафедры № 7 «Экспериментальная ядерная физика и космофизика» НИЯУ МИФИ Колдобскому Сергею Александровичу за ценные консультации по вопросам ядерной физики.

Литература

1. Национальный центр ядерных данных Брукхейвенской национальной лаборато-

рии США. Электронный ресурс: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/> (дата доступа 12.10.2021).

2. Варламов В.В., Ишханов Б.С., Комаров С.Ю. Атомные ядра. Основные характеристики: учебное пособие. – М.: Университетская книга, 2010. – 334 с. ISBN 978-5-91304-145-6.

3. Kang J., Von Hippel F.N. U-232 and Proliferation Resistance of U-233 in Spent Fuel. // Science and Global Security. – 2001. – Vol. 9. – PP. 1-32. DOI: <https://doi.org/10.1080/08929880108426485>.

4. De Volpi A. Denaturing Fissile Materials. // Progress in Nuclear Energy. – 1982. – Vol. 10. – PP. 161-220. DOI: [https://doi.org/10.1016/0149-1970\(82\)90022-1](https://doi.org/10.1016/0149-1970(82)90022-1).

5. Kulikov G.G., Shmelev A.N., Apse V.A., Kulikov E.G. Physical aspects for involvement of thermonuclear reactors into nuclear power systems. // Journal of Physics: Conference Series. – 2020. – Vol. 1689. – Article 012033. DOI: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1689/1/012033>.

6. Kulikov G.G., Shmelev A.N., Kruglikov A.E., Apse V.A., Kulikov E.G. Possibility assessment for production of non-traditional nuclear fuel in thorium blanket of hybrid thermonuclear reactor. // Journal of Physics: Conference Series. – 2020. – Vol. 1689. – Article 012034. DOI: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1689/1/012034>.

7. Андрианов А.А., Купцов И.С., Осипова Т.А., Андрианова О.Н., Утянская Т.В. Оптимизационные модели двухкомпонентной ядерной энергетики с тепловыми и быстрыми реакторами в замкнутом ядерном топливном цикле. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2018. – № 3. – С. 100-112. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2018.3.09>.

8. Kulikov G.G., Shmelev A.N., Geraskin N.I., Kulikov E.G., Apse V.A. Advanced Nuclear Fuel Cycle for the RF Using Actinides Breeding in Thorium Blankets of Fusion Neutron Source. // Nuclear Energy and Technology. – 2016. – Vol. 2. – PP. 147-150. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nucet.2016.05.014>.

9. Orlov V.V., Shatalov G.E., Marin S.V. Evolution of fuel isotope composition in blanket of hybrid thermonuclear reactor. // Report of Kurchatov Institute on Nuclear Energy. – 1979. – PP. 29-30.

10. Shief H.E.J. et al. Measurements of the Reaction Rate Distributions Produced in a Large Thorium Cylinder by a Central Source of DT Neutrons. – United Kingdom Atomic Energy Authority, 1977.

11. Krumbein A., Lemanska M., Segev M., Wagschal J.J., Yaari A. Reaction rate calculations in Uranium and Thorium blankets surrounding a central Deuterium-Tritium neutron source. // Nuclear Technology. – 1980. – Vol. 48. – PP. 110-116. DOI: <https://doi.org/10.13182/NT80-A32457>.

Поступила в редакцию 16.10.2021 г.

Авторы

Куликов Геннадий Генрихович, главный эксперт

E-mail: gegkulikov@rosatom.ru

Шмелёв Анатолий Николаевич, профессор

E-mail: shmelan@mail.ru

Апсэ Владимир Александрович, заведующий НИС

E-mail: apseva@mail.ru

Куликов Евгений Геннадьевич, доцент

E-mail: egkulikov@mephi.ru

UDC 621.039.58

PROLIFERATION PROTECTION OF URANIUM DUE TO THE PRESENCE OF ^{232}U DECAY PRODUCTS AS INTENSE SOURCES OF HARD GAMMA RADIATION

Kulikov G.G.* , Shmelev A.N.** , Apse V.A.** , Kulikov E.G.**

* State Atomic Energy Corporation ROSATOM
24 Bolshaya Ordynka Str, 119017 Moscow, Russia

** NRNU MEPhI
31 Kashirskoe Hwy, 115409 Moscow, Russia

ABSTRACT

The purpose of the article is to show the nuclear-physical causes of hard γ -quanta in the uranium-232 decay chain, to propose tactics for handling uranium containing uranium-232, and to assess the magnitude of its protective γ -barrier against uncontrolled use of uranium.

The authors show the general picture of the decays of the chain of nuclide transformations of uranium-232, on which the protection of uranium from its uncontrolled use is based. During the decay of nuclei, their emission of α - or β -particles is only the first stage of the most complex process of rearrangement of both the internal structure of the nucleus itself, which consists in the rearrangement of the neutron and proton shells and the levels of its excitation, and in the rearrangement of the electron shells of the atom. As a rule, the daughter nucleus is in a highly excited state, which is removed by the emission of hard γ -quanta and internal conversion electrons. After the second case, the remaining excitation of the atom is removed by the emission of characteristic γ -quanta and Auger-electrons with characteristic γ -quanta.

In addition, explanations are given for the quantum-mechanical reasons for the hard γ -radiation of thallium-208 and bismuth-212, which complete the decay chain of uranium-232.

The authors also proposed a tactic for handling uranium containing uranium-232. Since the hard γ -quanta of thallium-208 and bismuth-212 appear only at the end of the decay chain of uranium-232, after its chemical purification from its decay products, uranium-232 itself does not pose a radiation hazard; therefore, at this time it is advisable to conduct all necessary operations for transporting the material to the plant, fabricating uranium-based fuel containing uranium-232, and transporting this fuel to the nuclear facility where it will be used.

Key words: hard γ -radiation, chain of nuclide transformations of uranium-232, proliferation protection of uranium.

REFERENCES

1. National Nuclear Data Center of Brookhaven National Laboratory of USA. Available at: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/> (accessed Oct. 12, 2021).
2. Varlamov V.V., Ishhanov B.S., Komarov S.Yu. *Atomic Nuclei. Main Characteristics: Training Manual*. Moscow. Universitetskaya Kniga Publ., 2010, 334 p. ISBN 978-5-91304-145-6 (in Russian).
3. Kang J., Von Hippel F.N. U-232 and Proliferation Resistance of U-233 in Spent Fuel. *Science and Global Security*. 2001, v. 9, pp. 1-32; DOI: <https://doi.org/10.1080/08929880108426485>.
4. De Volpi A. Denaturing Fissile Materials. *Progress in Nuclear Energy*. 1982, v. 10, pp. 161-220; DOI: [https://doi.org/10.1016/0149-1970\(82\)90022-1](https://doi.org/10.1016/0149-1970(82)90022-1).

5. Kulikov G.G., Shmelev A.N., Apse V.A., Kulikov E.G. Physical Aspects for Involvement of Thermonuclear Reactors into Nuclear Power Systems. *Journal of Physics: Conference Series*. 2020, v. 1689, art. 012033; DOI: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1689/1/012033>.
6. Kulikov G.G., Shmelev A.N., Kruglikov A.E., Apse V.A., Kulikov E.G. Possibility Assessment for Production of Non-Traditional Nuclear Fuel in Thorium Blanket of Hybrid Thermonuclear Reactor. *Journal of Physics: Conference Series*. 2020, v. 1689, art. 012034; DOI: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1689/1/012034>.
7. Andrianov A.A., Kuptsov I.S., Osipova T.A., Andrianova O.N., Utyanskaya T.V. Optimization Models of a Two-Component Nuclear Energy System with Thermal and Fast Reactors in a Closed Nuclear Fuel Cycle. *Izvestiya Vuzov. Yadernaya Energetika*. 2018, no. 3, pp. 100-112. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2018.3.09> (in Russian).
8. Kulikov G.G., Shmelev A.N., Geraskin N.I., Kulikov E.G., Apse V.A. Advanced Nuclear Fuel Cycle for the RF Using Actinides Breeding in Thorium Blankets of Fusion Neutron Source. *Nuclear Energy and Technology*. 2016, v. 2, pp. 147-150; DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nucet.2016.05.014>.
9. Orlov V.V., Shatalov G.E., Marin S.V. Evolution of Fuel Isotope Composition in Blanket of Hybrid Thermonuclear Reactor. *Report of Kurchatov Institute on Nuclear Energy*. 1979, pp. 29-30 (in Russian).
10. Shief H.E.J. et al *Measurements of the Reaction Rate Distributions Produced in a Large Thorium Cylinder by a Central Source of DT Neutrons*. United Kingdom Atomic Energy Authority, 1977.
11. Krumbein A., Lemanska M., Segev M., Wagschal J.J., Yaari A. Reaction Rate Calculations in Uranium and Thorium Blankets Surrounding a Central Deuterium-Tritium Neutron Source. *Nuclear Technology*. 1980, v. 48, pp. 110-116; DOI: <https://doi.org/10.13182/nt80-a32457>.

Authors

Kulikov Gennady Genrikhovich, Chief Expert

E-mail: gegakulikov@rosatom.ru

Shmelev Anatoly Nikolaevich, Professor

E-mail: shmelan@mail.ru

Apse Vladimir Aleksandrovich, Head of Scientific and Research Sector

E-mail: apseva@mail.ru

Kulikov Evgeny Gennad'evich, Assistant Professor

E-mail: egkulikov@mephi.ru