

Résolution analytique des équations de décroissances de radioxénon dans une situation d'explosion nucléaire sans fractionnement : version Python

Kassoum YAMBA^{1*}, Oumar SANOGO¹, Issaka OUEDRAOGO¹

Résumé

La caractérisation des événements nucléaires et en particulier la détermination de la signature des explosions nucléaires fait partie des éléments scientifiques primordiales dans le domaine de la sécurité et la non-prolifération des armes nucléaires dans le monde. La détermination de la signature d'une explosion nucléaire nécessite de connaître l'évolution dans le temps de tous les éléments radioactifs dans un prélèvement donné. Le calcul de l'activité isotopique du radioxénon est rendu difficile du à la complexité du calcul du nombre de radionucléides à partir des équations différentielles de décroissance radioactive, particulièrement dans le cas d'une explosion nucléaire sans fractionnement (sans séparation des débris d'intérêt). Ce travail visant à évaluer les solutions analytiques du nombre de nucléides de radioxénon sous PYTHON utilise des données nucléaires et radioactives dans la résolution des équations différentielles de décroissance. La version PYTHON des formules analytiques du nombre de radionucléides et des activités isotopiques du radioxénon pertinent Xe-135, Xe-133m, Xe-133 et Xe-131m proposées dans ce travail peuvent être utiles et intégrés dans les algorithmes de calcul pour les études d'événements nucléaires. Le résultat analytique version PYTHON version (xenon-analytical-equations.py) est rendu disponible en ligne :

<https://www.voltaso.com/work/non-prolifération/xenon-analytical-equations.zip>

Mots Clés : nucléaire, équations différentielles, décroissance

Abstract

The characterization of nuclear events and in particular the determination of the signature of nuclear explosions is one of the essential scientific elements in the field of security and the non-proliferation of nuclear weapons. Determining the signature of a nuclear explosion requires knowing the evolution over time of all the radioactive elements in a given sample. The calculation of the isotopic activity of radioxenon is made difficult due to the complexity of the calculation of the number of radionuclides from the differential equations of radioactive decay, particularly in the case of a nuclear explosion without fractionation (without separation of the debris of interest). This work aimed at evaluating the analytical solutions of the number of radioxenon nuclides under PYTHON uses nuclear and radioactive data in the resolution of differential decay equations. The PYTHON version of the analytical formulas of the number of radionuclides and the isotopic activities of the relevant radioxenon Xe-135, Xe-133m, Xe-133 and Xe-131m proposed in this work can be useful and integrated into the calculation algorithms for the studies of nuclear events. The analytical result PYTHON version (xenon-analytical-equations.py) is made available online:

¹ Centre National de Recherche Scientifique et Technologique (IRSAT/CNRST), Ouagadougou, Burkina Faso, BP 7047 Ouagadougou, Burkina Faso

Auteur Correspondant : fairlir@yahoo.fr

Keywords: nuclear, differential equation, decay chain

Introduction

Le Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (TICE) est un instrument juridique international qui interdit tout essai nucléaire dans tous les compartiments de l'environnement terrestre (souterrain, sur terre, dans l'eau et dans l'atmosphère). Ouvert à la signature en septembre 1996, le TICE est signé à la date de juillet 2022 par plus de 186 Etats. Chaque Etat partie au traité collabore avec l'Organisation du Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (OTICE) dans le cadre du régime de vérification du traité, qui est un ensemble d'éléments scientifiques s'assurant du respect des termes du traité par les Etats parties. Le régime de vérification comprend le système de surveillance international (SSI), le centre international de données (CID) et l'inspection sur place (ISP).

La communauté scientifique travaille depuis l'avènement du TICE à mettre en place des outils scientifique et techniques permettant de distinguer la signature d'une explosion nucléaire des autres événements nucléaires tels que les rejets des centrales nucléaires et les libérations des industries de production d'isotopes médicaux. Les radio-isotopes du xénon, à savoir Xe-135, Xe-133m, Xe-133 et Xe-131m, sont considérés comme les indicateurs les plus pertinents dans la surveillance des explosions nucléaires (DE GEER L.-E. et al., 2001). Les rapports d'activité pour une paire d'isotopes par rapport à une autre paire d'isotopes à l'échelle logarithmique peuvent être utilisés pour caractériser la source de l'émission et, surtout, pour faire la distinction entre les réacteurs nucléaires et les explosions nucléaires (Kalinowski and Pistner, 2006). Ces radioxénons, en considérant également leur rapport de noyaux ou rapport d'activité isotopique peuvent permettre de déterminer le moment d'un relâchement nucléaire (Bin, 1998).

La détermination de la signature d'une explosion nucléaires nécessite de connaître l'évolution de tous les éléments radioactifs dans un prélèvement donné, et en particulier les éléments radioactifs pertinents tels que les isotopes du xénon (Yamba et al., 2018). Pour chaque radioxénon, le nombre de particules peut être évalué en résolvant les équations différentielles de décroissance radioactives.

Les formules donnant les activités isotopiques dans le cas d'une explosion nucléaire sans fractionnement immédiat, sont très difficiles à écrire analytiquement. Ainsi, au lieu d'utiliser une formule analytique, une approche numérique basée sur l'équation de Bateman (Bateman, 1910) a été couramment utilisée dans de nombreuses études pour caractériser les événements nucléaires.

Ce travail propose des formules complètes basées sur une approche analytique de l'activité isotopique des quatre radioxénons d'intérêt, Xe-135, Xe-133m, Xe-133 et Xe-131m.

1. Approche méthodologique

L'utilisation des rapports d'activité du radioxénon dans la chronologie des événements nucléaires nécessite des données de mesure issues des observations du Système international de surveillance (SSI) et des algorithmes appropriés qui peuvent être obtenus à partir de la désintégration radioactive. Après un essai nucléaire (souterrain notamment), le radioxénon concerné peut rester mélangé à ses précurseurs pendant un certain temps, ce qui nécessite de prendre en compte la contribution des précurseurs dans la quantité de noyaux de xénon détectés. En considérant les transitions bêta moins et gamma dans les chaînes de désintégration du radioxénon concerné, la chaîne 135 commence par Sn-135, 133 par In-133 et 131 par Cd-131, comme le montre la figure 1 qui donne un aperçu des chaînes de décroissance aboutissant aux isotopes de radioxénon Xe-135, Xe-133m, Xe-133 and Xe-131m en condition de croissance. Cette présentation prend en compte un isotope de plus (Sloan et al., 2016) environ la chaîne 131, et deux de plus que la chaîne 131 de De GEER (De Geer, 2012).

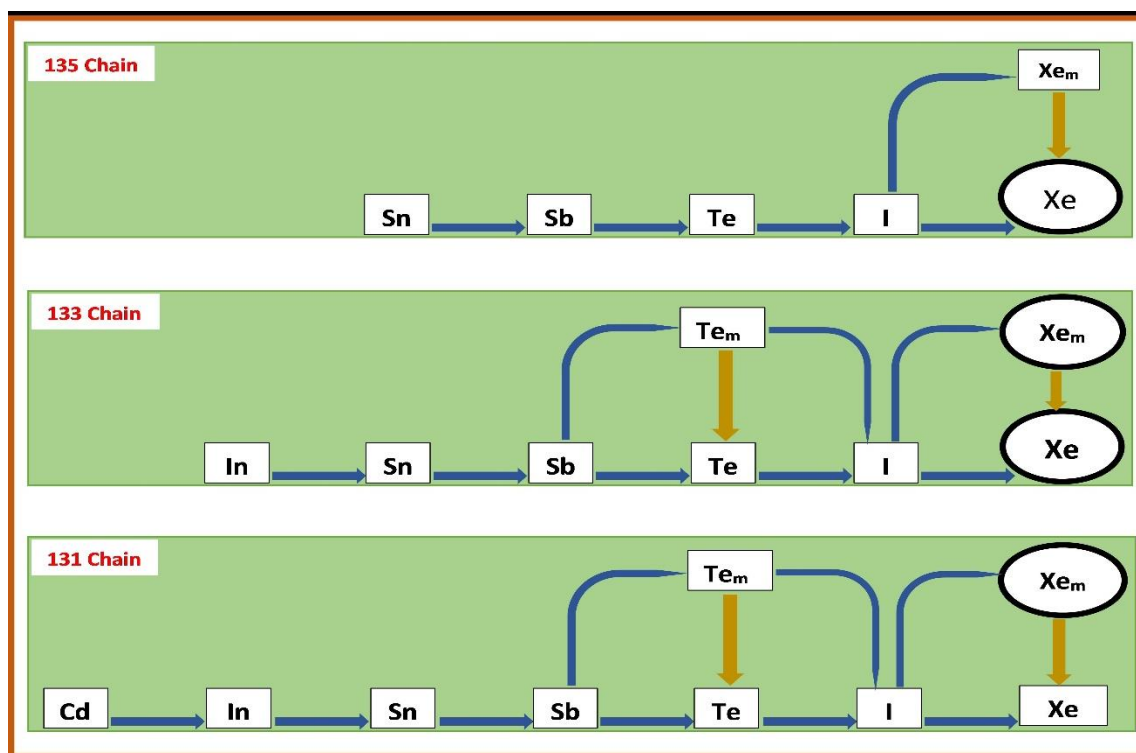


Figure 1: Chaînes de décroissance des radioxénons d'intérêt Xe-131m, Xe-133 and Xe-135.

• Utilisation de l'équation de Batman

Le taux de variation du nombre de nucléides à travers une chaîne de désintégration est décrit par un système d'équations différentielles. Pour une chaîne droite sans ramification qui part d'un seul nucléide parent avec un nombre de $N_1(t=0)$, alors que les fils sont initialement nuls, les solutions générales pour le nombre $N_n(t)$ du nième nucléide à l'instant t ont été données par (Bateman, 1910). L'équation de Bateman doit être étendue pour prendre en compte d'autres paramètres (Kalinowski, 2011).

Pour obtenir l'activité isotopique de chaque radioxénon d'intérêt en condition de croissance, il faut calculer l'équation de Batman étendue afin de prendre en compte les nombres initiaux de nucléides (nombres de nucléides à l'instant zéro) pour chaque isotope concerné. Cette extension permet également de prendre en compte chaque ramification de désintégration (voir équation 1) (Kalinowski and Pistner, 2006).

$$N_{m,n}(t) = \sum_{k=1}^n \left[N_{m,k}^0 \cdot \prod_{l=k}^{n-1} P_{m,l} \cdot \sum_{j=1}^n \left(\frac{T_{m,n}}{T_{m,j}} \cdot \prod_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^n \frac{1}{1 - \frac{T_{m,i}}{T_{m,j}}} \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_{m,j}} \cdot t} \right) \right] \quad (1)$$

$N_{m,n}(t)$: Nombre de nucléides ;

$N_{m,k}^0$: Rendement indépendant de fission ;

$P_{m,l}$: Rapport d'embranchement ;

T : demi-vie avec $T = \ln(2)/\lambda$, λ est la constante de décroissance;

m : Mass number (131, 133 or 135);

j, k, n, l : Index des isotopes et isomères d'intérêt ;

t : Temps écoulé.

On peut remarquer que cette équation de Bateman étendue doit être résolue numériquement pour chaque isotope d'intérêt.

2. Approche analytique

Comme on peut le voir sur la figure 1, la détermination de l'activité isotopique de Xe-135, Xe-133m (et Xe-133) et Xe-131m prend nécessairement en compte la désintégration de leurs précurseurs. Les trois chaînes de désintégration commencent respectivement par l'étain (Sn-135), l'indium (In-133) et le cadmium (Cd-131).

Les isotopes et les isomères ne sont pas inclus dans les équations différentielles si leur rendement de fission indépendant est inférieur à 10^{-10} . Par exemple, la chaîne 135 pourrait commencer avec In-135 qui a une demi-vie $T = (9.2000 \pm$

$1.0000)10^{-2}$ seconde, un rapport de ramification du mode Beta-moins $P_{(In-135, Sn-135)}=0,0000\%$ et un rendement de fission indépendant $Y_{ind.} = (7.2554 \pm 4.6435)10^{-11}$. Compte tenu de la faible valeur du rendement de fission, ce nucléide peut être ignoré.

Les isomères à demi-vie très courte sont retirés des équations différentielles et leur contribution représentée de manière appropriée. Dans la chaîne 133, le nucléide I-133m ayant une demi-vie $T=(9,000\pm 2,0000)$ secondes est pris en compte dans la quantité initiale d'I-133 avec une demi-vie $T = (7.4880 \pm 0.0360)10^{+4}$ secondes et la ramification de Te-133m qui a une demi-vie $T = (3.3240 \pm 0.0240)10^{+3}$ secondes est corrigée en tenant compte du facteur de ramification $P_{Tem-133,I-133}$. Pour la chaîne 131, le nucléide Sn-131m de demi-vie $T = (5.8400 \pm 0.0500)10^{+1}$ secondes est pris en compte dans la quantité initiale de Sn-131.

Le système d'équations différentielles décrivant l'évolution des quatre isotopes de radioxénon d'intérêt en situation de croissance est donné dans l'équation (2).

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_{Cd}(t)}{dt} = -\lambda_{Cd} \cdot N_{Cd}(t) \\ \frac{dN_{In}(t)}{dt} = -\lambda_{In} \cdot N_{In}(t) + P_{Cd,In} \cdot \lambda_{Cd} \cdot N_{Cd}(t) \\ \frac{dN_{Sn}(t)}{dt} = -\lambda_{Sn} \cdot N_{Sn}(t) + P_{In,Sn} \cdot \lambda_{In} \cdot N_{In}(t) \\ \frac{dN_{Sb}(t)}{dt} = -\lambda_{Sb} \cdot N_{Sb}(t) + P_{Sn,Sb} \cdot \lambda_{Sn} \cdot N_{Sn}(t) \\ \frac{dN_{Tem}(t)}{dt} = -\lambda_{Tem} \cdot N_{Tem}(t) + P_{Sb,Tem} \cdot \lambda_{Sb} \cdot N_{Sb}(t) \\ \frac{dN_{Te}(t)}{dt} = -\lambda_{Te} \cdot N_{Te}(t) + P_{Tem,Te} \cdot \lambda_{Tem} \cdot N_{Tem}(t) + P_{Sb,Te} \cdot \lambda_{Sb} \cdot N_{Sb}(t) \\ \frac{dN_I(t)}{dt} = -\lambda_I \cdot N_I(t) + P_{Tem,I} \cdot \lambda_{Tem} \cdot N_{Tem}(t) + P_{Te,I} \cdot \lambda_{Te} \cdot N_{Te}(t) \\ \frac{dN_{Xe_m}(t)}{dt} = -\lambda_{Xe_m} \cdot N_{Xe_m}(t) + P_{I,Xe_m} \cdot \lambda_I \cdot N_I(t) \\ \frac{dN_{Xe}(t)}{dt} = -\lambda_{Xe} \cdot N_{Xe}(t) + P_{Xe_m,Xe} \cdot \lambda_{Xe_m} \cdot N_{Xe_m}(t) + P_{I,Xe} \cdot \lambda_I \cdot N_I(t) \end{array} \right. \quad (2)$$

Où $P_{i,j}$ est le rapport de ramification d'indice i et j les isotopes d'intérêt.

On peut remarquer dans l'équation (2) que la chaîne 135 commence de Sn₁₃₅ à Xe₁₃₅, et sans Te_{135m}. Cela permet de réduire son système d'équations différentielles à 6

équations. Concernant la chaîne 133, elle commence de In_{133} à Xe_{133} , avec 8 équations, et la chaîne 131 commence de Cd_{131} à Xe_{131m} avec 8 équations dans son système d'équations différentielles. La résolution de ces trois systèmes d'équations différentielles est très difficile à la main compte tenu de la longueur de chaque solution d'intérêt donnant les nombres de nucléides en fonction du temps, et en tenant compte des nombres initiaux de nucléides (nombres de chaque nucléide à le temps zéro), à $N_i(t = 0) = N_i^0 \neq 0$. N_i^0 est relatif au rendement de fission indépendant induit par le neutron rapide.

Dans notre cas, nous avons pu résoudre ces systèmes d'équations différentielles à la main et avons obtenu les solutions analytiques $N_{\text{Xe}135}(t)$, $N_{\text{Xe}133}(t)$, $N_{\text{Xe}133m}(t)$ et $N_{\text{Xe}131m}(t)$ que nous avons utilisées dans ce travail.

3. Résultats et Discussion

Les solutions analytiques obtenues après résolution du système d'équations différentielles pour une condition de croissance d'une explosion nucléaire ont été intégrées dans un fichier PYTHON où les formules des nombres de nucléides $N_{\text{Xe}135}(t)$, $N_{\text{Xe}133m}(t)$, $N_{\text{Xe}133}(t)$ et $N_{\text{Xe}131m}(t)$ sont donnés. La solution générale apparaît dans l'équation (3), où R_i sont des constantes, $N_i(0)$ et λ_i sont déjà définis ci-dessus. A noter que pour l'équation donnant le nombre de nucléides de Xe-135, R_{Cd} , R_{In} et R_{Tem} sont nuls. Pour Xe-133m, R_{Cd} et R_{Xe} sont nuls. Pour Xe-133, R_{Cd} est nul et R_{Xe} est nul dans l'équation de Xe-131m.

$$\begin{aligned}
 N(t) = & N_{\text{Cd}}(0) \cdot R_{\text{Cd}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Cd}} \cdot t} + N_{\text{In}}(0) \cdot R_{\text{In}} \cdot e^{-\lambda_{\text{In}} \cdot t} + N_{\text{Sn}}(0) \cdot R_{\text{Sn}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Sn}} \cdot t} \\
 & + N_{\text{Sb}}(0) \cdot R_{\text{Sb}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Sb}} \cdot t} + N_{\text{Tem}}(0) \cdot R_{\text{Tem}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Tem}} \cdot t} + N_{\text{Te}}(0) \cdot R_{\text{Te}} \\
 & \cdot e^{-\lambda_{\text{Te}} \cdot t} + N_{\text{I}}(0) \cdot R_{\text{I}} \cdot e^{-\lambda_{\text{I}} \cdot t} + N_{\text{Xe}m}(0) \cdot R_{\text{Xe}m} \cdot e^{-\lambda_{\text{Xe}m} \cdot t} + N_{\text{Xe}}(0) \\
 & \cdot R_{\text{Xe}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Xe}} \cdot t} \quad (3)
 \end{aligned}$$

Afin de valider les équations issues de la résolution analytique, une comparaison des résultats implémentés dans le logiciel MATLAB (Hahn et al., 2013) a été faite avec une autre étude (Kalinowski, 2011) utilisant l'approche numérique en implémentant l'équation de Bateman, et il se trouve que les deux semblent identiques. Cela confirme ainsi la justesse de la formule d'activité analytique ou une version MATLAB est proposée dans (Yamba et al., 2018).

La figure 2 montre l'évolution dans le temps du nombre de nucléides dus à 100 fissions dans le graphique en haut à gauche, le nombre relatif de nucléides dans le graphique en haut à droite, l'activité isotopique due à 1Kt équivalent TNT dans le graphique en bas à gauche et l'activité relative dans tracé en bas à droite. Le matériau de fission considéré ici est l'uranium 235 (U-235) avec l'énergie des neutrons prise comme neutrons de fission. Pour calculer l'activité isotopique due à 1Kt équivalent TNT, la libération

d'énergie instantanée a été considérée comme correspondante à 180,80 méga-électron-volt par fission d'U-235 (Kaye&Laby Online, 1995). Le nombre relatif de nucléides est obtenu en faisant le rapport de chaque formule par la somme sur les quatre isotopes/isomères. Le même calcul est effectué pour obtenir l'activité relative.

Les formules analytiques proposées à partir de cette étude fonctionnent bien sur PYTHON lorsque toutes les données de désintégration et les rendements de fission de chaque nucléide sont fournis. Les données de désintégration peuvent être trouvées en ligne dans les bases de données nucléaires telles que le LARA du Laboratoire National Henry Becquerel (LNHB - CEA) (Library for gamma and alpha emissions, 2017) ou ENSDF du National Nuclear Data Center (Evaluated Nuclear Structure Data File, 2017). Les données sur le rendement de fission se trouvent dans les fiches de données nucléaires (Otuka et al., 2014). Une version en ligne est accessible via <https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>. On peut également mentionner que certaines données sur la désintégration du radioxénon ont été mises à jour en 2017 par un projet du CTBT (Galan et al., 2018) et certaines données étaient déjà en ligne (Galán, 2009). Il est très important de prendre en considération les données de décroissance, car le calcul de l'âge est très sensible aux paramètres de mesure et de décroissance mentionnés (Yamba et al., 2016). Cette étude utilise les données de désintégration ENSDF VI et les données DDEP 2017 pour Xe-133 et Xe-135.

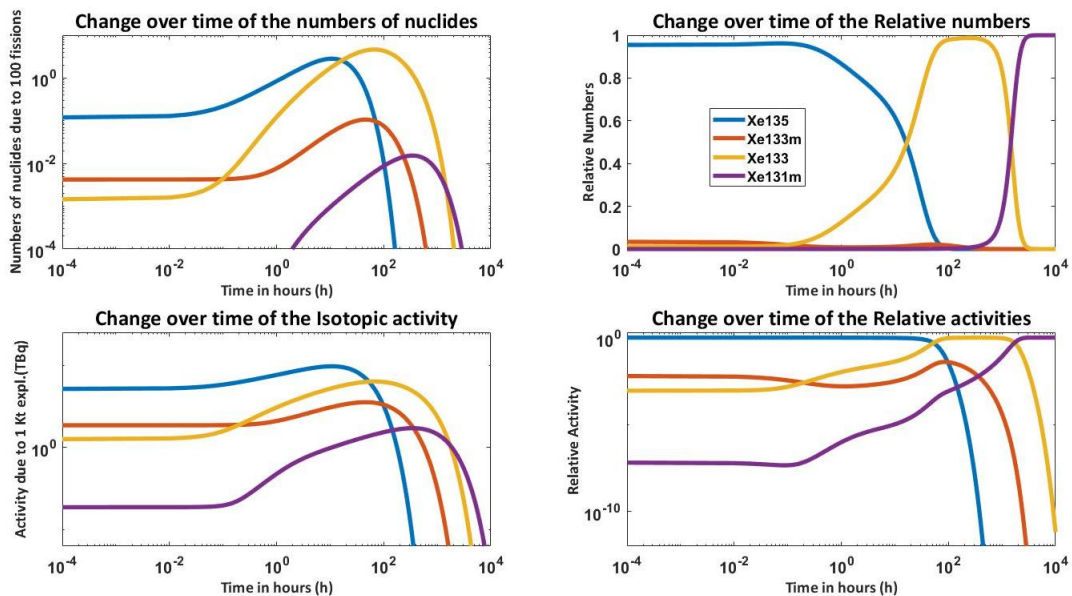


Figure 2 : En haut à gauche : Evolution dans le temps des nombres des nucléides Xe-135, Xe-133m, Xe-133 et Xe-131m due à 100 fissions ; En haut à droite : Évolution dans le temps des nombres relatifs de nucléides aux nucléides ; En bas à gauche : évolution dans le temps de

l'activité due à 1Kt équivalent TNT ; En bas à droite : Évolution dans le temps de l'activité relative.

4. Conclusion

Cet article présente une nouvelle approche pour le calcul des formules d'activité isotopique pour les quatre isotopes/isomères radioxénon pertinents de l'OTICE dans des conditions de croissance. Dans les études d'événements supposant la croissance d'une explosion nucléaire, l'équation de Bateman basée sur une approche numérique est généralement utilisée dans la communauté scientifique travaillant pour soutenir le Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (TICE). Les formules analytiques de l'activité isotopique du radioxénon dans des conditions de croissance telles que proposées dans ce travail peuvent être directement utilisées dans les études de caractérisation des événements nucléaires. En utilisant le nombre de nucléides de radioxénon dans le temps $N_i(t)$ donné dans le fichier PYTHON joint (xenon-analytical-equations.py) et accessible en ligne via <https://www.voltaso.com/work/non-prolifération/xenon-analytical-equations.zip>, les activités isotopiques $A_i(t)$ sont données par l'équation (8), où λ_i est la constante de désintégration de l'isotope considéré. L'indice i désigne le radioxénon d'intérêt Xe-135, Xe-133m, Xe-133 ou Xe-131m.

$$A_i(t) = \lambda_i \cdot N_i(t) \quad (2)$$

L'utilité des solutions analytiques version PYTHON est non seulement sa libre disponibilité prêt à usage, mais aussi sa facilité d'implémentation dans des algorithmes pour la caractérisation des événements, à savoir la détermination du temps zéro de l'événement à partir des rapports d'activité isotopique.

Références

Bateman, H.: The solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations, Proc. Cambridge Philos. Soc, 423–427, 1910.

Bin, L.: Analysis of fission products— a method for verification of a CTBT during on-site inspections, Sci. Glob. Secur., 7, 195–207, <https://doi.org/10.1080/08929889808426454>, 1998.

De Geer, L.-E.: Radionuclide Evidence for Low-Yield Nuclear Testing in North Korea in April/May 2010, Sci. Glob. Secur., 20, 1–29, <https://doi.org/10.1080/08929882.2012.652558>, 2012.

DE GEER L.-E., MARSHALL Peter, ROZGONOVA Daniela, and WEISS Wolfgang: Comprehensive nuclear-test-ban treaty: relevant radionuclides, Kerntech. 1987, 66, 113–120, 2001.

Galan, M., Kalinowski, M., Gheddou, A., and Yamba, K.: New evaluated radioxenon decay data and its implications in nuclear explosion monitoring, *J. Environ. Radioact.*, 192, 628–634, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.02.015>, 2018.

Hahn, B. H., Valentine, D. T., and HAHN, B. H.: *Essential MATLAB for Engineers and Scientists* (Fifth Edition), <http://www.sciencedirect.com/science/book/9780123943989>, 2013.

Kalinowski, M. B.: Characterisation of prompt and delayed atmospheric radioactivity releases from underground nuclear tests at Nevada as a function of release time, *J. Environ. Radioact.*, 102, 824–836, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2011.05.006>, 2011.

Kalinowski, M. B. and Pistner, C.: Isotopic signature of atmospheric xenon released from light water reactors, *J. Environ. Radioact.*, 88, 215–235, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2006.02.003>, 2006.

Kaye&Laby Online: Atomic and nuclear physics - Nuclear fission and fusion, and neutron interactions, in: *Kaye&Laby Tables of Physical & Chemical Constants*, National Physical Laboratory (NPL), 1995.

Library for gamma and alpha emissions: <http://www.nucleide.org/Laraweb/>, last access: 1 May 2017.

Evaluated Nuclear Structure Data File: <http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>, last access: 1 May 2017.

Otuka, N., Dupont, E., Semkova, V., Pritychenko, B., Blokhin, A. I., Aikawa, M., Babykina, S., Bossant, M., Chen, G., Dunaeva, S., Forrest, R. A., Fukahori, T., Furutachi, N., Ganesan, S., Ge, Z., Gritzay, O. O., Herman, M., Hlavač, S., Katō, K., Lalremruata, B., Lee, Y. O., Makinaga, A., Matsumoto, K., Mikhaylyukova, M., Pikulina, G., Pronyaev, V. G., Saxena, A., Schwerer, O., Simakov, S. P., Soppera, N., Suzuki, R., Takács, S., Tao, X., Taova, S., Tárkányi, F., Varlamov, V. V., Wang, J., Yang, S. C., Zerkin, V., and Zhuang, Y.: Towards a More Complete and Accurate Experimental Nuclear Reaction Data Library (EXFOR): International Collaboration Between Nuclear Reaction Data Centres (NRDC), *Nucl. Data Sheets*, 120, 272–276, <https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.07.065>, 2014.

Sloan, J., Sun, Y., and Carrigan, C.: Uncertainty quantification for discrimination of nuclear events as violations of the comprehensive nuclear-test-ban treaty, *J. Environ. Radioact.*, 155–156, 130–139, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.02.022>, 2016.

Yamba, K., Sanogo, O., Kalinowski, M. B., Nikkinen, M., and Koulidiati, J.: Fast and accurate dating of nuclear events using La-140/Ba-140 isotopic activity ratio, *Appl. Radiat. Isot.*, 112, 141–146, <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2016.03.013>, 2016.

Yamba, K., Kalinowski, M. B., and Sanogo, O.: Nuclear event zero time determination using analytical solutions of radioxenon activities under in-growth condition, *Appl. Radiat. Isot.*, 139, 217–223, <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2018.04.020>, 2018.

