

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

5451,<sup>1</sup>82

15/11-82

P9-82-565

В.П.Джелепов, В.П.Дмитриевский, В.В.Кольга

НАКОПЛЕНИЕ ТРАНСПЛУТОНИЕВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ  
НА УСКОРИТЕЛЯХ

Направлено на VIII Всесоюзное совещание  
по ускорителям заряженных частиц  
/Протвино, октябрь 1982 г./

1982

## ВВЕДЕНИЕ

Накопление трансплутониевых элементов /ТПЭ/ в ядерных реакторах происходит, как известно, путем последовательного многократного захвата нейтронов ядрами изотопов плутония или других более тяжелых элементов. Одновременно в процессе накопления ТПЭ происходит существенное уменьшение некоторых промежуточных изотопов за счет деления ядер. В связи с этим процесс накопления ТПЭ осуществляется в несколько стадий с проведением химических переработок облученных материалов на каждой стадии, при этом на второй или третьей стадии используется неделяющийся стартовый изотоп при максимально возможной плотности потока нейтронов в облучательном устройстве реактора.

В настоящей работе рассматривается возможность использования на этой стадии накопления  $\text{Sm}$ ,  $\text{Bk}$ ,  $\text{Cf}$ , называемых обычно далекими ТПЭ, нейтронного генератора на основе ускорителя дейтронов. Расчеты ориентированы на параметры проектируемых циклических ускорителей Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ - ДЦ-1, ДЦ-2<sup>1/</sup> на энергию  $90 \pm 100$  МэВ и  $1700 \pm 2000$  МэВ. В качестве стартового изотопа для наработки ТПЭ принят неделяющийся  $^{242}\text{Pu}$ . Проводится сравнение параметров накопления /количество, время/ с аналогичными параметрами при накоплении ТПЭ в высокопоточных реакторах, например, реакторе  $\text{CM-2}^{12/}$ . На последней стадии накопления далеких ТПЭ наряду с величиной потока нейтронов определяющее значение имеет жесткость нейтронного спектра в облучаемом образце<sup>12/</sup>.

Существенное преимущество нейтронного генератора на базе ускорителя по сравнению с реактором заключается в характере распределения плотностей нейтронных потоков по объему замедлителя и отражателя, окружающих нейтронную мишень. Увеличение плотности потока резонансных /надтепловых/ нейтронов в случае использования нейтронного генератора позволяет существенно снизить время наработки ТПЭ, а также увеличить максимальный выход соответствующего изотопа.

### 1. ПРИНЦИП РАБОТЫ НЕЙТРОННОГО ГЕНЕРАТОРА ДЛЯ НАКОПЛЕНИЯ ТПЭ

Возможность создания нейтронных генераторов на базе ускорителей рассматривается во многих физических лабораториях. В Лос-Аламосе на ускорителе LAMF<sup>13/</sup> и в Ванкувере на циклотроне

"Triumf" /4/ работают такие генераторы. Проектируется такой генератор и на ускорителе SIN /5/. Рассмотрены некоторые возможности нейтронных генераторов на базе проектов сильноточных протонных /6,7/ и дейтронных ускорителей /1/ Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ. Двухстадийное ускорение дейтронов /1/ на циклических ускорителях на энергию /90 ± 100/ МэВ и /1700 ± 2000/ МэВ при максимальном токе пучка вплоть до 100 мА позволяет рассматривать возможности создания нейтронных генераторов на каждой стадии ускорения.

Рассмотрим возможности дейтронного пучка с энергией 100 МэВ и средней интенсивностью 100 мА для создания генератора нейтронов и оценим темпы наработки далеких ТПЭ на такой установке. Из экспериментальных данных следует, что при энергии дейтронов 100 МэВ на мишени из тяжелых элементов, окруженной оболочкой из естественного урана /в таких мишенях реакция срыва для дейтронов имеет существенное значение/, можно получить средний выход, равный одному нейтрону на каждый налетающий дейтрон /8/. Отсюда при токе 100 мА получается полный поток нейтронов  $6 \cdot 10^{17}$  н/с. Такое количество быстрых нейтронов при использовании в мишени нейтронного генератора в качестве замедлителя смеси тяжелой воды и бериллия создает поток тепловых нейтронов с плотностью около  $1 \div 3 \cdot 10^{15}$  см<sup>-2</sup> с<sup>-1</sup> /9/. Величина плотности потока надтепловых /резонансных/ нейтронов зависит от материала замедлителя и отражателя, конструкции мишени; для определения оптимальных параметров мишени, обеспечивающих максимальный вклад спектра надтепловых нейтронов, необходимы специальные исследования. В экспериментах на мишени нейтронного генератора циклотрона "Triumf" найдено, что отношение надтеплого потока на единицу логарифмического интервала энергии ( $\Phi_H$ ) к тепловому потоку ( $\Phi_T$ ) достигает 12% /4/.

Влияние надтеплого спектра нейтронов /0,4 ± 100 эВ/, в области которого сечения взаимодействия нейтронов с ядрами имеют резонансный характер, учитывается обычно введением эффективного сечения взаимодействия, которое определяется /10/ выражением

$$\sigma_9 = \sigma_T + \frac{\Phi_H}{\Phi_T} \cdot I, \quad /1/$$

где  $\sigma_T$  - сечение взаимодействия для тепловых нейтронов;  $\Phi_H = \frac{d\Phi}{dE} E$  - поток надтепловых нейтронов на единицу логарифмического интервала энергий, начиная от резонансной энергии захвата для кадмия  $E_{Cd} = 0,4$  эВ;  $I = \int_{E_{Cd}}^{E_{max}} \sigma_{рез} \frac{dE}{E}$  - резонансный интеграл захвата или деления. Экспериментальное определение доли надтепловых

нейтронов в спектре генератора нейтронов производится с помощью кадмиевого отношения, которое определяется по активации золота в экране из кадмия и без него:

$$R = 1 + \left( \frac{\sigma_T}{I} \right)_{Au} \cdot \frac{\Phi_T}{\Phi_H} = 1 + 0,063 \frac{\Phi_T}{\Phi_H}. \quad /2/$$

Измеренные, а также рассчитанные значения величин кадмиевых отношений в высокопоточных реакторах и мишенях нейтронных генераторов колеблются в пределах 1,1 ÷ 3.

Накопление заданного актиноида во времени вычисляется по формуле Бейтмана /10/:

$$Y = \frac{N_n}{N_1^0} = \frac{n-1}{k=1} (\lambda^c_k) \cdot \sum_{i=1}^n \frac{e^{-\lambda_i \cdot t}}{\prod_{j \neq i} (\lambda_j - \lambda_i)}, \quad /3/$$

где Y - относительный выход актиноида в цепочке превращений,

$$\lambda^c = \sigma_c \cdot \Phi_T; \quad \lambda^f = \sigma_f \cdot \Phi_T; \quad \lambda = \lambda^c + \lambda^f + \lambda^a + \lambda^\beta, \quad /3a/$$

$\sigma_c$ ,  $\sigma_f$  - сечения захвата и деления для тепловых нейтронов или эффективные сечения этих взаимодействий.

Если в i-м звене цепочки определяющим является β-распад, то соответствующий член исключается из формулы /3/, что эквивалентно мгновенному переходу к следующему изотопу.

## 2. РАСЧЕТ НАКОПЛЕНИЯ

В таблице приведены взятые из работы /11/ для цепочки превращений от <sup>242</sup>Pu до <sup>252</sup>Cf сечения деления и захвата для теплового потока нейтронов, резонансные интегралы  $I_f$ ,  $I_c$ , выраженные, в барнах, а также периоды полураспада соответствующих изотопов ( $T_\alpha, \beta$ ).

По формулам /1/, /3/, /3a/ на ЭВМ был проведен расчет выхода изотопа <sup>252</sup>Cf при стартовом продукте <sup>242</sup>Pu, исходном потоке тепловых нейтронов  $\Phi_T = 10^{15}$  см<sup>-2</sup> с<sup>-1</sup> и различных отношениях  $\xi = \Phi_H / \Phi_T$ .

На рис.1 в качестве иллюстрации приведены графики накопления <sup>252</sup>Cf при  $\xi = 0$  /тепловой спектр, кривая 1/,  $\xi = 0,063$  /кривая 2/,  $\xi = 0,2$  /кривая 3/ и  $\xi = 0,5$  /кривая 4/. Там же показана цепочка превращений <sup>242</sup>Pu → <sup>252</sup>Cf, которая использовалась в расчетах.

На рис.2 показана зависимость относительного выхода <sup>252</sup>Cf от жесткости спектра нейтронов /параметр ξ/. Видно, что при  $\xi = 0,2$  выход <sup>252</sup>Cf увеличивается в 10 раз по сравнению с тепловым спектром нейтронов и далее до  $\xi = 1$  увеличивается еще в 3,5 раза.

Таблица

Изотоп	$\xi_f$	$I_f$	$\xi_c$	$I_c$	$T$
$^{242}\text{Pu}$	0	0	18,5	1130	$3,87 \cdot 10^5$ лет
$^{243}\text{Pu}$	196	-	60	-	4,96 часа
$^{243}\text{Am}$	0,07	0	79,6	1820	7370 лет
$^{244}\text{Am}$	2300	-	-	-	10,1 часа
$^{244}\text{Cm}$	1,2	12,5	13,9	650	18 лет
$^{245}\text{Cm}$	2020	750	345	101	$8,53 \cdot 10^3$ лет
$^{246}\text{Cm}$	0,17	10	1,3	121	4820 лет
$^{246}\text{Cm}$	90	880	61	512	$1,54 \cdot 10^7$ лет
$^{248}\text{Cm}$	0,34	13,2	5,2	250	$3,5 \cdot 10^5$ лет
$^{249}\text{Cm}$	0	0	2,8	50	64 мин.
$^{249}\text{Bk}$	553	0	1706	1850	314 дней
$^{250}\text{Bk}$	960	0	350	0	3,22 часа
$^{250}\text{Cf}$	350	0	2000	0	13,1 года
$^{251}\text{Cf}$	2850	5900	4300	1600	900 лет
$^{252}\text{Cf}$	32	110	20,4	43,5	2,63 года

На рис.3 приведены зависимости времени достижения максимального выхода /сплошная кривая/ и 80-процентного выхода /пунктирная кривая/ изотопа  $^{252}\text{Cf}$  от  $\xi$ . Здесь также видно, что увеличение доли надтепловых нейтронов выше значения  $15 \pm 25\%$  незначительно уменьшает время накопления.

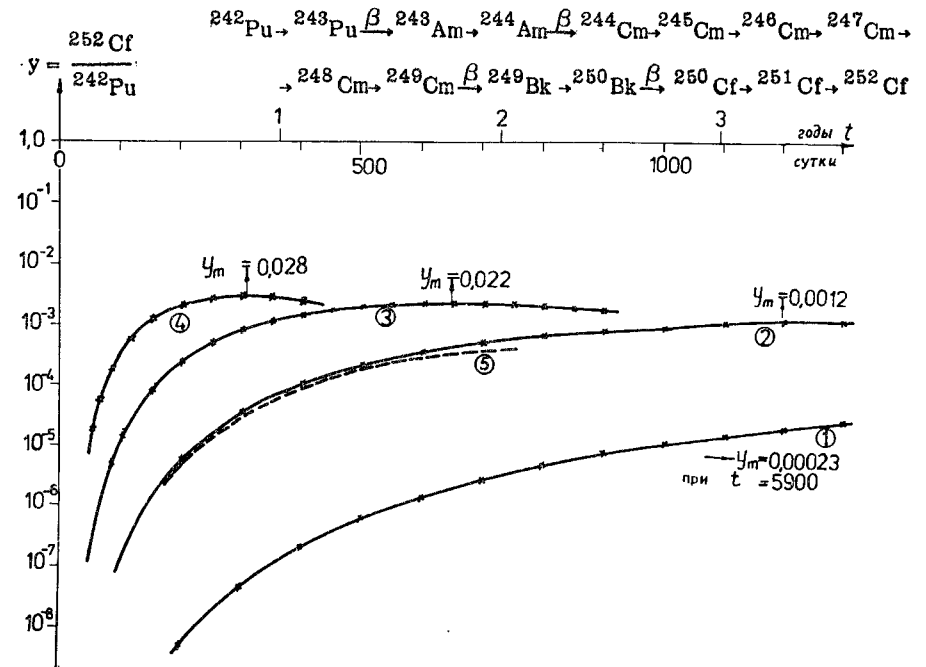


Рис.1

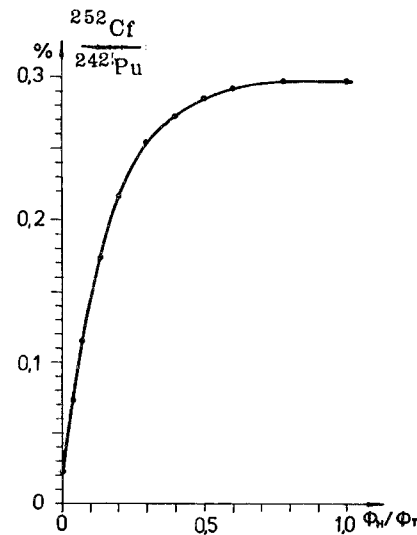


Рис.2

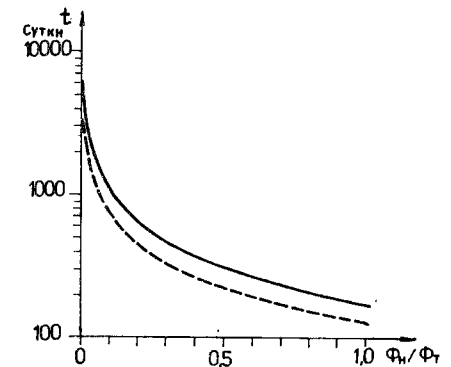


Рис.3

Таким образом, результаты проведенных расчетов показывают, что для увеличения выхода  $^{252}\text{Cf}$  и уменьшения времени накопления на порядок необходимо создать мишень, обеспечивающую в зоне облучаемых образцов отношение  $\Phi_{\text{H}}/\Phi_{\text{T}}$ , равное ~20%.

Расчет накопления  $^{244}\text{Cm}$  показал, что при  $\Phi_{\text{T}}=10^{15}\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$  и  $\xi=0,2$  выход увеличивается по сравнению с  $\xi=0$  на 10%, а время накопления уменьшается в 9,3 раза и далее при  $\xi \rightarrow 1$  эти параметры изменяются незначительно.

Увеличение потока тепловых нейтронов пропорционально сжимает временной масштаб без нарушения формы кривой выхода. Тепловыделение в облучаемом образце будет определяться в основном, как видно из таблицы, делящимся с большим сечением изотопом  $^{245}\text{Cm}$ . Расчеты показывают, что при массе стартового изотопа  $^{242}\text{Pu}$ , равной 1 г, и  $\Phi_{\text{T}}=10^{15}\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$  тепловыделение от деления  $^{245}\text{Cm}$  составит максимально 2,5 кВт при  $t=150$  суткам и затем при  $t \approx 500$  суткам уменьшится на порядок.

Представляет интерес провести некоторые сравнения полученных расчетных параметров накопления далеких ТПЭ при облучении в мишени нейтронного генератора с соответствующими параметрами при облучении  $^{242}\text{Pu}$  в действующих высокопоточных реакторах с жестким спектром нейтронов в зоне облучения. Наиболее характерными в этом отношении являются реакторы HFIR /США/ и СМ-2, которые используют в качестве горючего уран, обогащенный на 90% изотопом  $^{235}\text{U}$ , в качестве замедлителя - обычную воду и бериллий. В центре водяной ловушки реактора СМ-2 при мощности 75 МВт получается тепловой поток до  $3,9 \cdot 10^{15}\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$  и жесткость спектра около 3÷5%<sup>12/</sup>. В самой активной зоне /вблизи ТВЭЛов/ значение  $\xi$  возрастает до 0,78, однако тепловой поток уменьшается до  $8,6 \cdot 10^{13}\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$ .

Тепловыделение продуктов облучения в центральной ловушке может достигать 1 МВт. На рис.1 приведена экспериментальная кривая /пунктирная линия/ накопления  $^{252}\text{Cf}$  из  $^{242}\text{Pu}$ , полученная при помещении 1 г  $^{242}\text{Pu}$  в центр водяной ловушки СМ-2, при параметрах, соответствующих рабочему режиму реактора<sup>13/</sup>.

Следует также отметить, что мощность дейтронного пучка 10 МВт обеспечивается примерно  $15 \pm 20$  МВт электроэнергии, тогда как для эксплуатации СМ-2 при мощности 75 МВт требуется около 150 кг/год<sup>12/</sup> изотопа  $^{235}\text{U}$ .

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе показана перспективность использования ускорителей дейтронов с энергией 100 МэВ и выше для накопления далеких трансплутониевых элементов. При мощности пучка 10 МВт такие установки могут успешно конкурировать с реакторами. Увеличение энергии дейтронного пучка приведет к линейному возрастанию числа нейтронов, что позволит соответственно уменьшать первичный дейтронный

ток ускорителя. Сооружение мишени при мощности в пучке ~10 МВт не представляет серьезных трудностей при современном развитии реакторной техники. Наиболее приемлемой, по-видимому, будет проточная мишень из смеси расплавленных солей фторидов урана ( $\text{UF}_4$ ) и щелочных металлов<sup>14/</sup>.

Из проведенных расчетов следует, что для эффективного накопления ТПЭ при использовании нейтронных генераторов на основе ускорительных установок целесообразно работать в области значений  $\Phi_{\text{H}}/\Phi_{\text{T}} = 0,15 \div 0,25$ , труднодоступных для высокопоточных ядерных реакторов, без существенного уменьшения теплового потока в зоне облучения.

Следует также отметить, что на базе дейтронного циклотрона можно организовать крупномасштабное производство доурановых радионуклидов, в том числе необходимых для медико-биологических применений: иода-123, брома-77, тулия-167, стронция-82, рубидия-83 и др.<sup>15/</sup>.

Использование замедлителей при температурах, соответствующих резонансным энергиям захвата нейтронов ядрами, в принципе позволит еще увеличить выходы соответствующих ТПЭ, однако для выяснения этих возможностей необходимы дополнительные исследования.

В заключение авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность Ю.С.Замятнину и В.А.Халкину за ряд ценных замечаний при обсуждении результатов этой работы.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Глазов А.А. и др. ОИЯИ, Р9-81-734, Дубна, 1981.
2. Замятнин Ю.С. и др. Радиохимия, 1977, т. XIX, №4, с.421.
3. Russel G. et al. In: Neutron Physics and Nucl.Data. Paris, OECD, 1978, p.1135.
4. Burgerjon J.J. et al. IEEE Trans. on Nucl.Sci., 1979, NS-26, No.3, p.3061.
5. Fischer W.E. et al. SIN, 1978, 200 Dok.-Inf.
6. Глазов А.А. и др. Труды V Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. "Наука", М., 1977, т.1, с.128.
7. Мурин Б.П., Федотов А.П. Труды VI Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. ОИЯИ, Дубна, 1979, т.1, с.241.
8. Crandall W., Millburn G. J.Appl.Phys., 1958, vol.29, p.698.
9. Fischer W. В кн.: Международная школа молодых ученых. Минск, 1979. ОИЯИ, Д9-12965, Дубна, 1980, с.112.
10. Кривохатский А.С., Романов Ю.Ф. Получение трансураниевых и актиноидных элементов при нейтронном облучении. Атомиздат, М., 1970.

11. Горбачев В.М., Замятнин Ю.С., Лбов А.А. Справочник. Атомиздат, М., 1976.
12. Давиденко В.А., Замятнин Ю.С. АЭ, 1972, т.33, вып.4, с.815.
13. Гаврилов В.Д. и др. АЭ, 1973, т.35, вып.1, с.33.
14. Furukawa K. et al. J.Nucl.Sci.Techn., 1981, vol.18, No.1, p.79.
15. Желепов В.П., Халкин В.А. ОИЯИ, 12-9283, Дубна, 1975.

Желепов В.П., Дмитриевский В.П., Кольга В.В. P9-82-565

Накопление трансплутониевых элементов на ускорителях

Рассматривается возможность использования для накопления далеких трансплутониевых элементов /ТПЭ/ нейтронного генератора на основе ускорителя дейтронов. Показано, что увеличение плотности потока надтепловых нейтронов в мишени генератора позволит существенно снизить время наработки ТПЭ, а также увеличить максимальный выход соответствующего изотопа. Выполнены расчеты процесса накопления ТПЭ на основе пучка дейтронов с энергией 100 МэВ и средней интенсивностью 100 мА при различной жесткости спектра нейтронов в мишени. Проведено сравнение полученных расчетных параметров накопления далеких ТПЭ при облучении в мишени нейтронного генератора с соответствующими параметрами при облучении в высокопоточных реакторах.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1982

Dzheleпов V.P., Dmitrievsky V.P., Kolga V.V. P9-82-565  
Accumulation of Transplutonium Elements in Accelerators.

Possibility to use a neutron generator based on the deuteron accelerator for the accumulation of distant transplutonium elements is considered. It is shown that increase of density of epithermal neutron flux in the generator target allows to essentially reduce the operating time and raise the maximum output of the relevant isotope. The accumulation process for transplutonium elements is evaluated on the basis of the 100 MeV deuteron beam, mean intensity being 100 mA, at varying hardness of the neutron spectrum in the target. The obtained parameters of the accumulation of distant transplutonium elements during irradiation in the target of a neutron generator are compared with the corresponding parameters for irradiation in high-flux reactors.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1982

Перевод М.И.Потапова.

Рукопись поступила в издательский отдел  
20 июля 1982 года.