

Государственная корпорация по атомной энергии «Росатом»
АО «ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РФ —
ФИЗИКО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
имени А. И. ЛЕЙПУНСКОГО»

ФЭИ–3302

Р. А. Шагинян, В. В. Коробейников, В. Ю. Стогов

**ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАВИСИМОСТИ
ЭФФЕКТИВНОСТИ НАРАБОТКИ РАЗЛИЧНЫХ
ИЗОТОПОВ ОТ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ СТРУКТУРЫ
ПЛОТНОСТИ НЕЙТРОННОГО ПОТОКА**

Обнинск – 2022

УДК 621.039.8.002

Шагинян Р. А., Коробейников В. В., Стогов В. Ю. Исследование зависимости эффективности наработки различных изотопов от энергетической структуры плотности нейтронного потока : Препринт ФЭИ–3302. Обнинск: ГНЦ РФ – ФЭИ, 2022. 40 стр.

Исследована зависимость удельной активности различных нуклидов (Co^{60} , Ni^{63} , Lu^{177} , Pu^{238}), полученных из разных мишенных материалов (Co^{59} , Ni^{62} , Cu^{63} , Lu^{176} , Yb^{176} , Am^{241} , Np^{237}) путём облучения каждой группы одногрупповым потоком, от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения.

Ключевые слова: Co^{60} , Ni^{63} , Lu^{177} , Pu^{238} , Co^{59} , Ni^{62} , Cu^{63} , Lu^{176} , Yb^{176} , Am^{241} , Np^{237} , наработка, удельная активность, сечение, группа, эффективность.

Shaginyan R.A., Korobeinikov V.V., Stogov V. Yu. *Study of the dependence of the efficiency of various isotopes on the energy structure of the neutron flux density*. Preprint FEI–3302. Obninsk, IPPE Publ., 2022. 40 p.

ВВЕДЕНИЕ

Радиоизотопы искусственного происхождения широко используются в народном хозяйстве: в медицине (диагностика и лечение), в промышленности (стерилизация, дефектоскопия, технологический контроль), в научных исследованиях и космических миссиях. В промышленности обычно используется небольшой список изотопов, но в очень больших (весовых) количествах. В медицине, напротив, используется множество изотопов с различными свойствами, но в очень ограниченных количествах.

Основными направлениями применения медицинских изотопов являются диагностика и терапия — применение меченых радиоактивными изотопами веществ для исследования функционального и морфологического состояния организма и наружное (а чаще — внутреннее) облучение ионизирующим излучением, применяемое для лечения злокачественных опухолей.

Большая часть медицинских изотопов — короткоживущие (с периодом полураспада от половины до несколько суток). Их задача — облучить или локализовать очаги новообразований и исчезнуть. Но кроме короткоживущих, в медицинской терапевтической практике используется ряд среднеживущих изотопов (с периодом полураспада до полугода) и даже долгоживущий изотоп радия (период полураспада 22 года). Все это изотопы не для массового производства. В основном они нарабатываются по предварительным заказам и после наработки немедленно (авиатранспортом) отправляются заказчику.

Наработка медицинских изотопов в энергетических и промышленных реакторах затруднительна, поскольку длительность их активации не может превышать двух-трех периодов полураспада. В производстве медицинских изотопов реакторным методом в России задействованы 5 основных площадок отрасли: НИФХИ им. Карпова, НИИАР, ИРМ, «Маяк» и Ленинградская АЭС.

Разнообразие изотопов технического назначения не так велико, как медицинских, но потребности в них велики, и, соответственно, велики объемы их производства. Задачи этих изотопов — стерилизация, дефектоскопия, рентгенофлуоресцентный анализ состава веществ и т. д. Короткоживущие изотопы здесь не используются, обычно это изотопы с периодами полураспада в несколько лет. Соответственно, нарабатывать их можно в боковом экране реактора: в первом ряду (изотопы, которые нарабатываются в быстром спектре в реакциях (n, p) и $(n, 2n)$) и во втором ряду (в облучательных устройствах с замедлителем).

Наиболее широко используемый технический изотоп — Co^{60} с жестким гамма-излучением, который в основном используется для стерилизации

(продуктов в хранилищах, медицинского инструмента и т. д.) Соответственно, и потребности в этом изотопе очень велики (десятки МКи в год). В основном он нарабатывается в тепловых реакторах (CANDU, РБМК), но высокую активность (более 80–100 Ки/г) в этих реакторах обеспечить невозможно. Быстрый реактор позволяет нарабатывать кобальт высокой активности (более 300 Ки/г). В мире отмечается дефицит этого изотопа, и в дальнейшем он будет только нарастать.

Внедрение инновационных решений в различных отраслях экономики и промышленности (аэрокосмическая отрасль, медицина, микроэлектроника, коммуникация, оборона и т. д.) требует новых безопасных источников энергии, которые могут удовлетворить производственные и бытовые нужды там, где применение традиционных технологий нерентабельно или невозможно. К их числу относятся источники на основе радиоактивного распада ядер с выделением большого количества энергии, которую можно преобразовать в электроэнергию. Это так называемые радиоизотопные источники энергии. Они принципиально отличаются от ядерных реакторов тем, что в них используется не энергия цепной реакции деления, а энергия радиоактивного распада ядер.

Наибольшую актуальность имеют радиоизотопные автономные источники питания (АИП), которые обеспечивают бесперебойную и автономную работу в течение длительного времени, занимают небольшой объем и надежны даже в экстремальных условиях. Мощность радиоизотопных АИП зависит от используемого радиоизотопа, компоновки и способа преобразования энергии и может составлять от нано- до нескольких сотен ватт.

Наиболее перспективными сферами применения АИП являются космос, малые беспилотные аппараты, медицина (кардиостимуляторы, нейростимуляторы), индустрия микроэлектромеханических устройств, системы безопасности капитальных сооружений и высотных строений, системы «умного автомобиля», системы обслуживания нефтегазопроводов и др. В зависимости от назначения и выполняемых задач к радиоизотопным АИП предъявляются различные требования (по мощности, сроку службы, размерам и т. д.).

Об актуальности тематики, связанной с созданием радиоизотопных АИП, свидетельствует количество НИОКР, которые проводятся как в России, так и в других странах, например в США, Великобритании, Японии, Южной Корее, Китае. НИОКР ведутся по таким направлениям, как повышение эффективности преобразования энергии распада в электроэнергию, увеличение выходной мощности, разработка новых конструкционных решений, повышение безопасности и др. [1].

Физико-технические особенности получения искусственных изотопов

Подходы к разработке и установке облучательных устройств отличны друг от друга в зависимости от целевого изотопа и имеющейся реакторной установки.

Различные востребованные радионуклиды нарабатываются на исследовательских реакторах, и именно тип установки играет одну из важнейших ролей в поисково-изыскательных работах.

Первичными вопросами являются поиски ликвидного мишенного материала, который будет эффективно использовать тот поток и с тем спектром, который имеется в установке.

На этом этапе возникают вопросы поиска эффективной области (по структуре микроскопических сечений) для наработки целевого изотопа. Необходимо искать не только высокие сечения мишенного материала, но и учитывать сечения целевого изотопа (и других звеньев в схеме наработки, приводящих к целевому изотопу), так как он при наличии высоких сечений может попросту перейти в другой изотоп. Необходимо подбирать область облучения таким образом (в идеале), чтобы целевые сечения мишенного материала были максимальными, а сечения целевого изотопа были минимальными.

На стадии разработки облучательного устройства имеется возможность коррекции итогового спектра за счет использования замедлителей/поглотителей (если это необходимо).

Наиболее частым случаем в наработке изотопов является тот факт, что мишенный материал имеет в тепловой области энергий сечения выше, чем в других. Этим, во-первых, обусловлена практика наработки искусственных изотопов в тепловых реакторах (как исследовательских, так и энергетических), во-вторых, возникают проблемы с чистотой конечного материала, так как высокие сечения в тепловой области могут быть не только у мишенного материала, но и у звеньев в цепочке и целевого нуклида.

Немаловажным фактором является период облучения, варьирование временем облучения, что вносит существенный вклад в величины конечного продукта. Необходимо подбирать пару мишень – целевой изотоп и установку так, чтобы режимы облучения могли осуществлять наиболее эффективную наработку. Отдельным случаем является выбор установки, реализующую короткий период облучения или возможности извлекать облучательные сборки «на ходу» работы реактора, для наработки короткоживущих изотопов.

Каждый упомянутый фактор необходим для того, чтобы разработать такое облучательное устройство которое будет эффективно нарабатывать искусственные изотопы в конкретной установке.

Исследования зависимостей эффективности наработки различных искусственных изотопов от энергетической структуры спектров нейтронного потока

Для исследования эффективности наработки искусственных изотопов от энергетической структуры спектра нейтронного потока одним из принципиальных моментов является задание самой энергетической структуры спектра нейтронного потока. В данной работе он представлен в 28-групповом приближении, который используется в библиотеке ядерных данных БНАБ-93 [2]. Расчёты проведены в программном комплексе для расчета радиационных характеристик топлива и конструкционных материалов ISKRA (версия 1.0) [3].

Последовательно моделируется облучение ряда изотопов нейтронами «однотипового» потока (т. е. все нейтроны испускались последовательно в каждой из 28 энергетических групп) при одинаковой плотности нейтронного потока равной $2 \cdot 10^{15}$ н/см²·с в течение разного промежутка времени: для короткоживущих 2 – 12 дней под облучением и последующих 2,5 дня выдержки без облучения, для долгоживущих 155 – 730 суток под облучением и 30 дней выдержки без облучения [4].

Наработка Co^{60}

Среди всех искусственных радиоактивных изотопов, наиболее широкое применение нашел Co^{60} . Источники гамма-излучения, использующие Co^{60} , являются неким стандартным вариантом везде, где необходимы фотоны с энергией более 1 МэВ.

Co^{60} находит свое применение в различных областях:

1. Основной рынок, где применяют Co^{60} , — стерилизация медицинских изделий и разнообразных продуктов питания.
2. Существует несколько направлений в промышленности, где используются источники с Co^{60} :
 - 2.1 толщиномеры и плотномеры;
 - 2.2 гамма-дефектоскопия (в основном толстых сварных швов);
 - 2.3 в редких случаях в качестве высотомеров;
 - 2.4 облучение пластиковых полимеров.
3. Медицина (гамма-нож и брахитерапия).
4. Наука.

В среднем ежегодное потребление Co^{60} в медицине оценивается примерно в 2,25 МКи, для промышленности — 55 МКи [5].

Наработка Co^{60} обеспечивается довольно простым путем: облучением мишени, состоящей из природного Co^{59} . Зависимость микроскопических сечений Co^{59} и Co^{60} от энергии нейтронов представлена на рисунке 1.

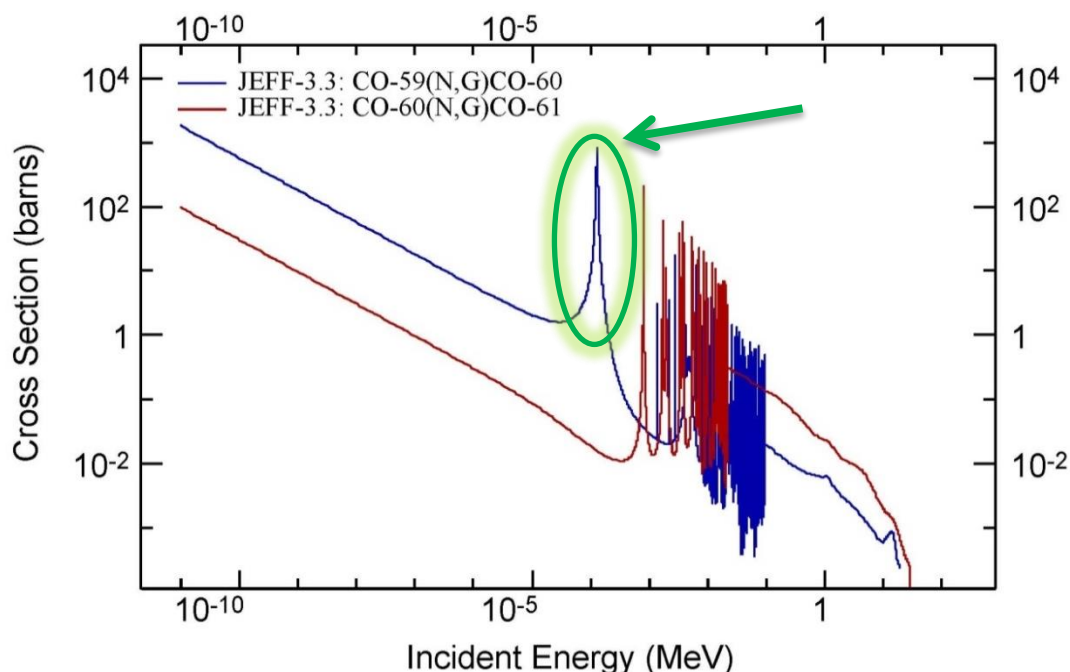


Рис. 1. Зависимости микроскопических сечений Co^{59} и Co^{60} от энергии нейтронов. Данные из [6]

Из рисунка 1 видно, что на отрезке энергий от 10^{-10} до 10^{-6} МэВ сечения для целевой реакции на Co^{59} выше более чем на порядок, что в свою очередь говорит о высокой эффективности наработки Co^{60} в данной области. Исходя из рисунка, можно отметить следующее: область с энергией выше 10^{-6} МэВ по структуре сечений целевой реакции является менее предпочтительной.

В расчетах приняты следующие периоды облучения для наработки Co^{60} , учитывая его $T_{1/2} = 5,27$ года: 4 шага по полгода и 30 дней выдержки (после 2 лет облучения) являются достаточными для понимания общей картины эффективности наработки.

Плотность мишенного материала $\text{Co}^{59} = 8,9$ г/см³.

На рисунке 2 приведен результат расчета удельной активности Co^{60} в зависимости от энергетической структуры спектра и времени.

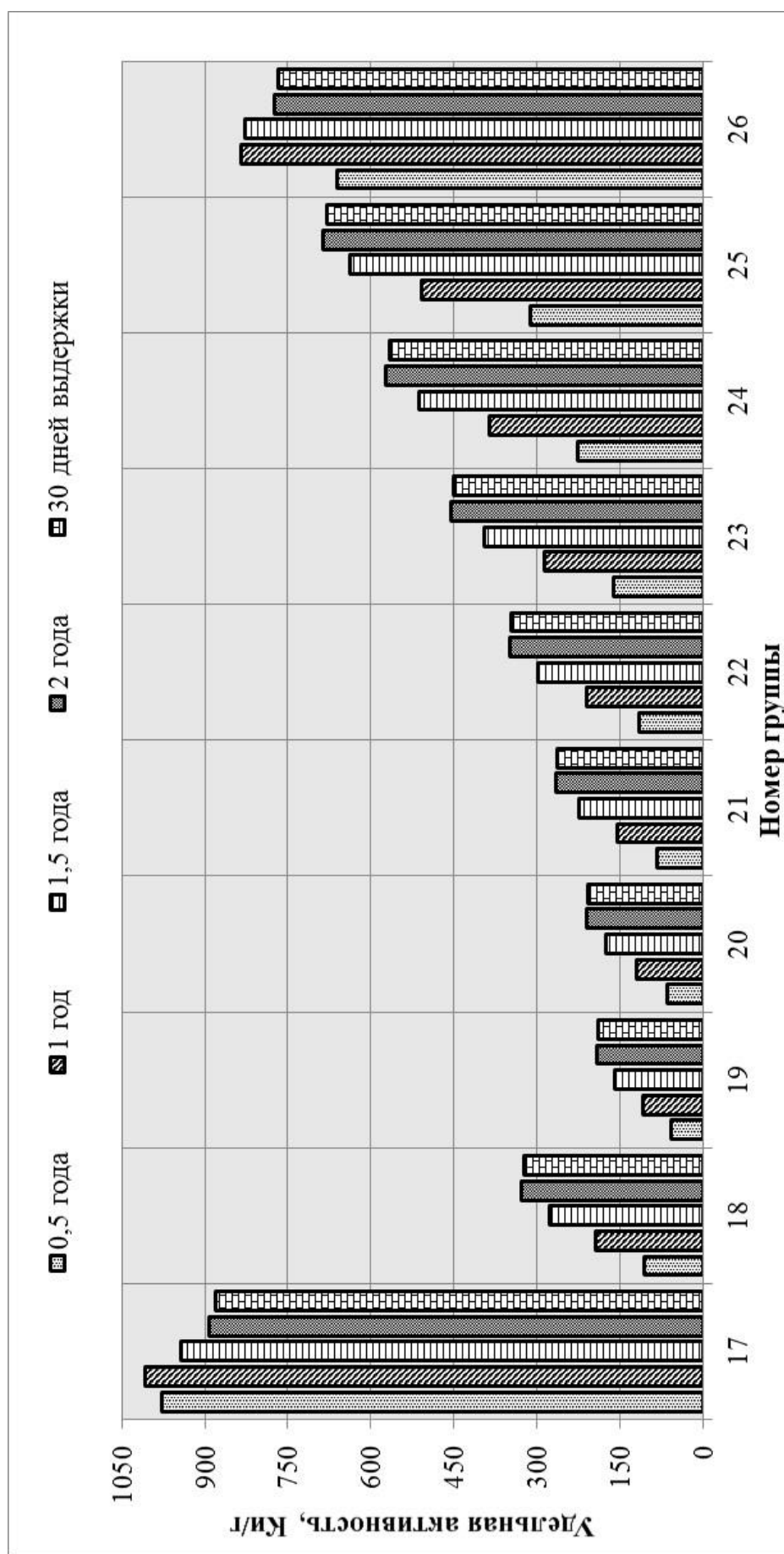


Рис. 2. Зависимость наработки Co^{60} от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

Из рисунка 2 вытекают следующие выводы.

Группа 17 является самой эффективной. В пике активность более 1 кКи/г. Это вполне очевидный результат: из рис. 1. видно, что Co^{59} имеет один довольно широкий резонанс, и как раз именно эта группа попадает под него, что в свою очередь характеризуется высокими сечениями взаимодействия и, следовательно, высокими скоростями реакций и наработки.

В группах 17 и 26 видно отличное от других групп нарастание удельной активности. Судя по графику, можно отметить, что после 30 дней выдержки наблюдается небольшой спад удельной активности, поэтому делается вывод, что в группах 17 и 26 наблюдается «критическая» удельная активность (концентрация Co^{60} становится столь большой, что даже превосходящие сечения взаимодействия Co^{59} над Co^{60} не могут поддерживать такой уровень удельной активности), которая достигается в этих группах за 1 год облучения и предположительно составляет величину ~ 800 Ки/г.

Если рассматривать целевым продуктом кобальт средней удельной активности ~ 100 Ки/г, то областью эффективной наработки можно назвать группы с 17 по 26, так как в них реализуются требуемые величины за период от полугода (17, 22 – 26 группы) до года (19 – 21 группы). Если же рассматривать кобальт высокой удельной активности, то показатели в ~ 200 Ки/г достигаются от полугода (17, 24 – 26 группы) до двух лет (19 – 20 группы).

В то же время максимумы по некоторым группам не достигнуты за 2 года либо из-за низкого соотношения сечений мишенного и целевого изотопов, либо из-за недостаточного времени облучения.

Наработка Ni^{63}

Радионуклид Ni^{63} , период полураспада которого составляет около 100 лет, применяется в современной технике при изготовлении электронозахватных детекторов для толщиномеров и газоанализаторов, сенсоров света в фотокамерах, неоновых ламп, плазменных дисплеев. Одной из перспектив применения данного радиоизотопа является использование его в качестве бета-вольтаического источника электрической энергии, в этом направлении проводится множество проектно-изыскательных работ по увеличению эффективности и уменьшению себестоимости [7].

В данной работе рассмотрено 2 пути наработки целевого изотопа Ni^{63} :

1. Облучение нейтронами изотопа $\text{Ni}^{62}(\text{n}, \gamma)\text{Ni}^{63}$;
2. Облучение нейтронами изотопа $\text{Cu}^{63}(\text{n}, \text{p})\text{Ni}^{63}$.

В первом случае получение целевого изотопа происходит за счет реакции захвата на никеле, а во втором за счет пороговой реакции на меди.

На рисунке 3 представлены зависимости структуры сечений от энергии нейтронов. Так как наработка происходит как пороговыми реакциями, так и реакциями захвата, необходимо рассмотреть графики отдельно (рис. 4, 5).

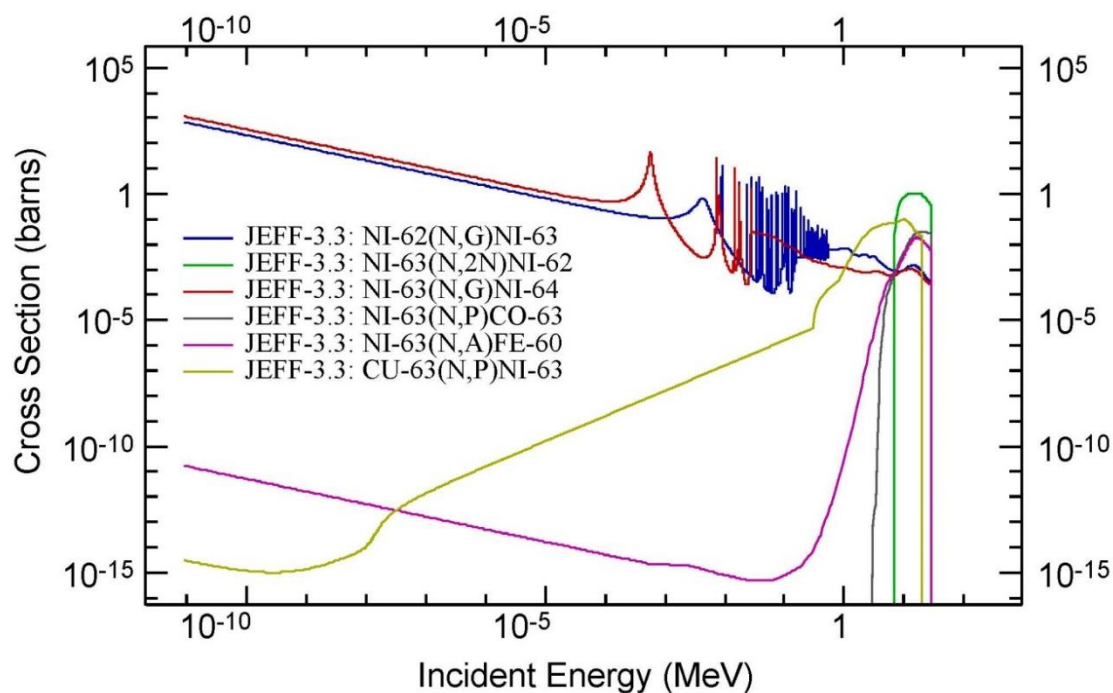


Рис. 3. Зависимости микроскопических сечений Cu^{63} , Ni^{62} , Ni^{63} от энергии нейтронов. Данные из [6]

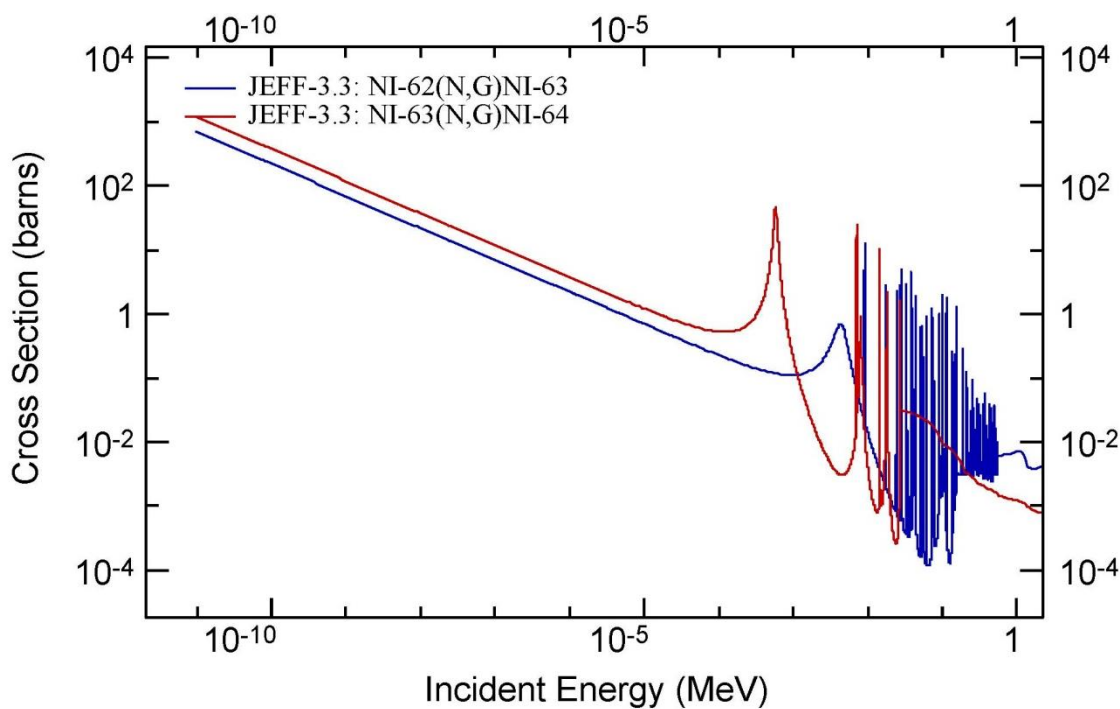


Рис. 4. Зависимости микроскопических сечений Ni^{62} и Ni^{63} от энергии нейтронов. Данные из [6]

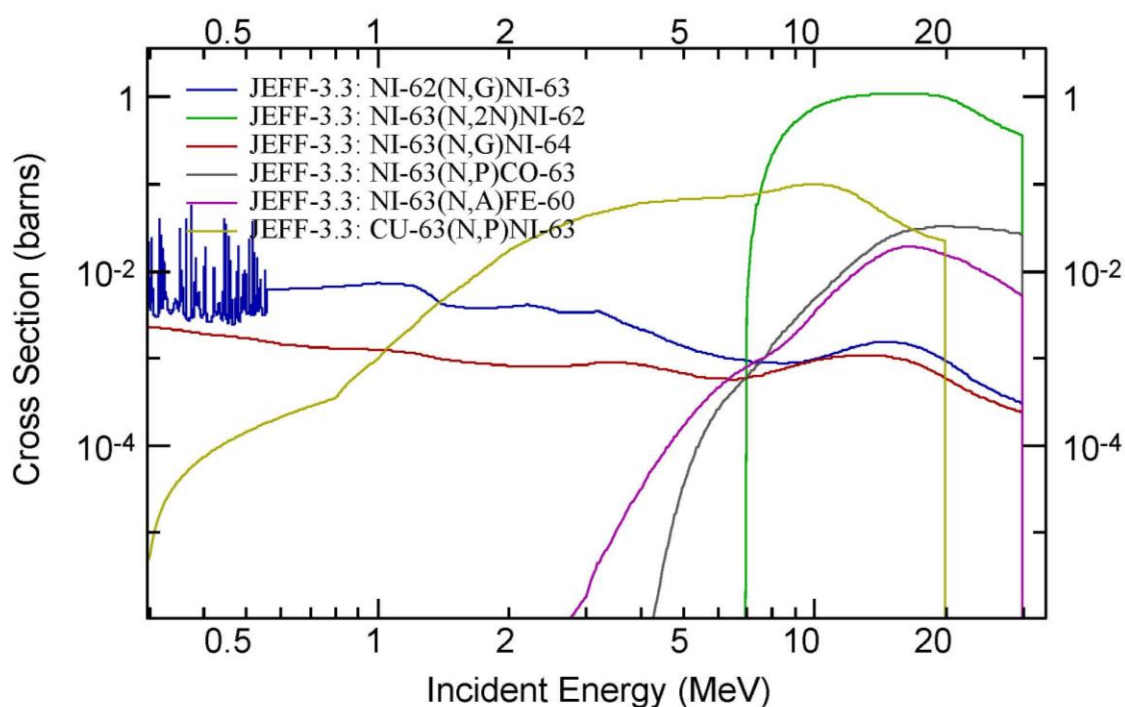


Рис. 5. Зависимости микроскопических сечений Cu^{63} и Ni^{63} от энергии нейтронов. Данные из [6]

Из рисунка 4 видно, что сечения целевого изотопа выше, чем мишенного материала. Это говорит о том, что равновесная концентрация наступает в довольно короткий период времени.

Так как пороговые реакции в основном проходят с нейтронами высоких энергий, в области энергий ниже 0,5 МэВ сечение взаимодействия (n, p) на меди крайне низкое, различие составляет 2 и более порядка.

По рисунку 5 видно, что область энергий от 1 до 7 МэВ является предпочтительной для наработки Ni^{63} на меди, так как все сопутствующие реакции имеют сечения ниже необходимой.

На рисунках 6 и 7 представлены зависимости наработки Ni^{63} от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения.

Рисунки 6 и 7 показывают, что 30-дневная выдержка (без облучения) практически не влияет на удельную активность, связано это с большим периодом полураспада.

Рассмотрим 26-ю энергетическую группу. После года облучения удельная активность достигает максимума по сравнению со всем энергетическим интервалом и временными отрезками, но сразу же в следующий цикл облучения удельная активность падает, наблюдается тот же эффект, что и с наработкой кобальта (рис. 2. группа 17 и 26), но в этом случае способствующим фактором такого поведения, как уже отмечалось выше,

является превосходящие сечения взаимодействия целевого изотопа над мишенным. Можно отметить, что для этой группы «критическая» удельная активность наступает на уровне ~ 15 Ки/г.

Поведение графика на рисунке 7 имеет очень близкую схожесть с поведением структуры сечений. Максимум наблюдается в энергиях около 5 МэВ (2-я группа), в этом промежутке практически отсутствуют (n,p), (n,2n), (n, α) реакции Ni^{63} , а реакция (n,g) на целевом нуклиде имеет более низкие сечения по сравнению с (n,p) на меди.

Исходя из расчетов и анализа полученных результатов, можно сделать следующие выводы. Для наработки Ni^{63} из Ni^{62} из всех групп предпочтительной является группа 25, опираясь на её удельную активность. Но можно расширить этот список исходя из условия наработки – более 10 Ки/г. В этом случае предпочтительными будут являться 23 – 26 группы.

В случае наработки Ni^{63} из меди «критические» параметры по удельной активности не достигаются, и, следовательно, при увеличении длительности выдержки и/или величины потока нейтронов значения могут быть выше. Максимальная удельная активность наблюдается в группе 4.

Сравнивая два этих способа наработки при заданных параметрах и исходя из величины удельной активности способ с использованием Ni^{62} отмечается более выгодным, нежели использование природной меди.

Наработка Lu^{177}

Lu^{177} является одним из наиболее перспективных радионуклидов, служащих основой для производства современных радиофармацевтических препаратов. Он демонстрирует высокую эффективность в таргетной терапии ряда онкологических заболеваний: метастатических форм кастрационно-резистентного рака предстательной железы, нейроэндокринных опухолей и др. Параллельно с противораковыми свойствами исследуется его применимость не в онкологических заболеваниях, например в локальной терапии Lu^{177} при воспалительных заболеваниях суставов.

На данный момент известно две реакторные схемы наработки целевого изотопа:

1. Использование реакции $\text{Lu}^{176}(\text{n},\gamma)\text{Lu}^{177}$;
2. Использование реакции $\text{Yb}^{176}(\text{n},\gamma)\text{Yb}^{177} \rightarrow \text{Lu}^{177}$

На рисунке 8 представлены зависимости структуры сечений от энергии нейтронов.

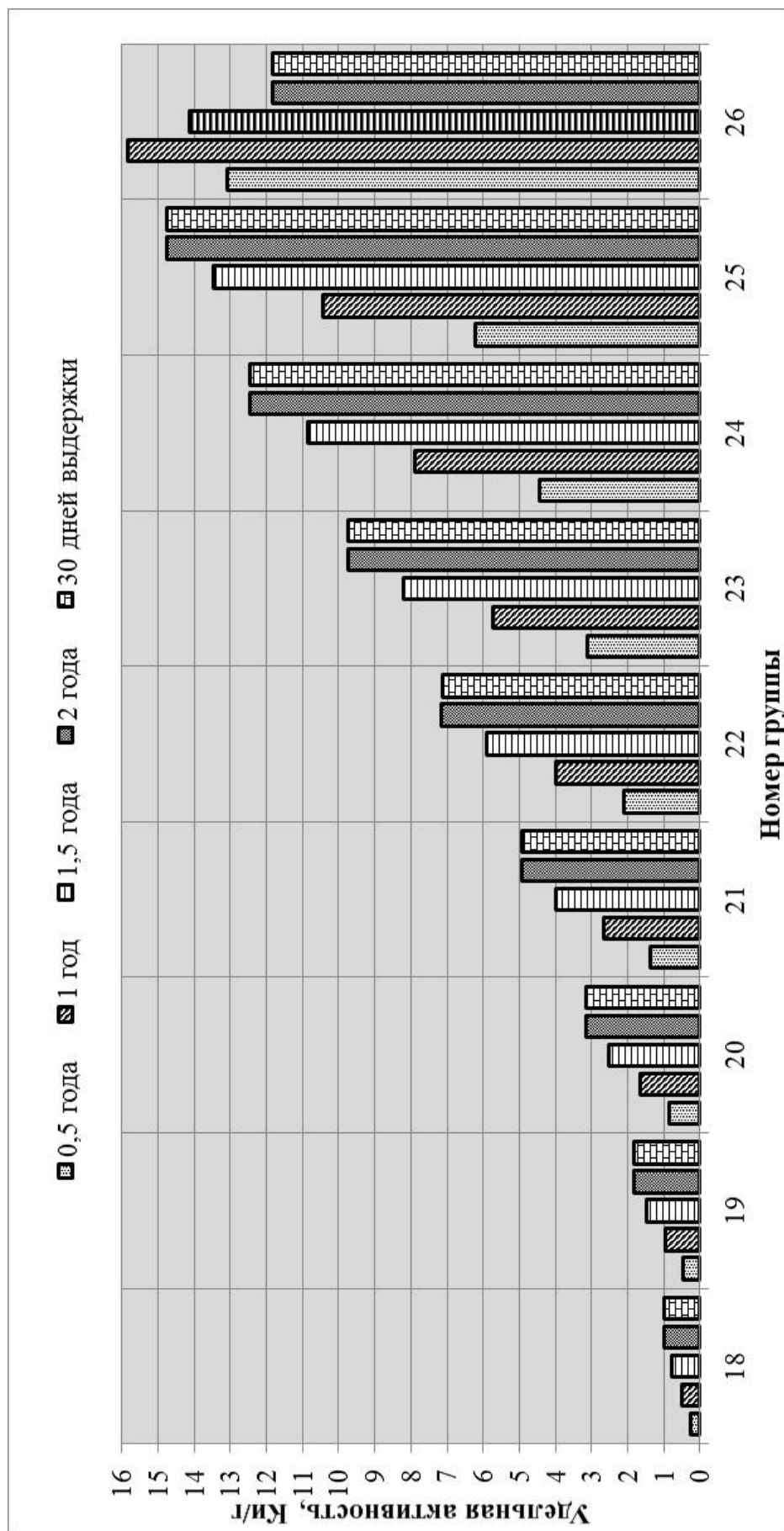


Рис. 6. Зависимость наработки Ni^{63} (из Ni^{62}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

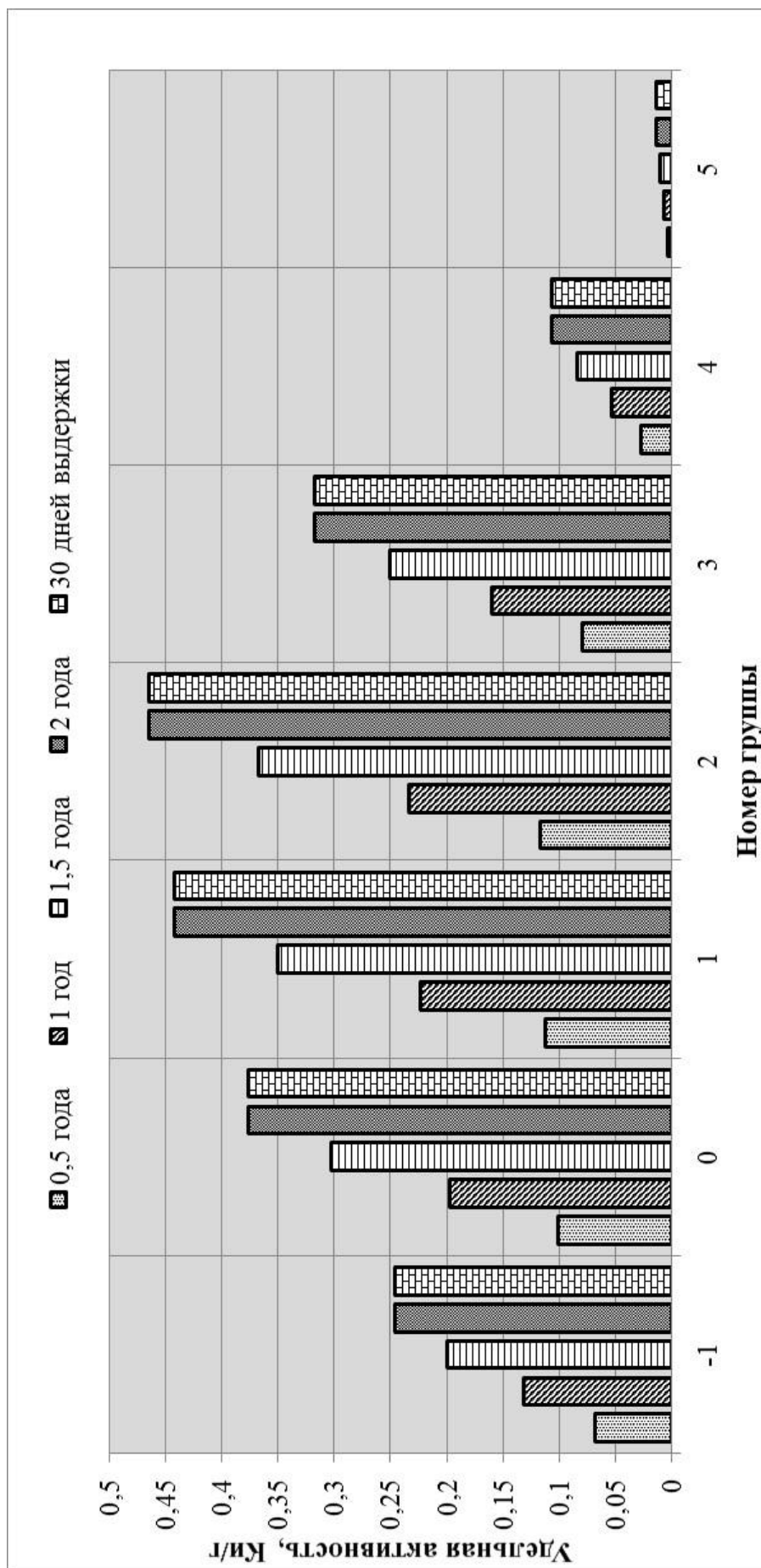


Рис. 7. Зависимость наработки Ni^{63} (из Cu^{63}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

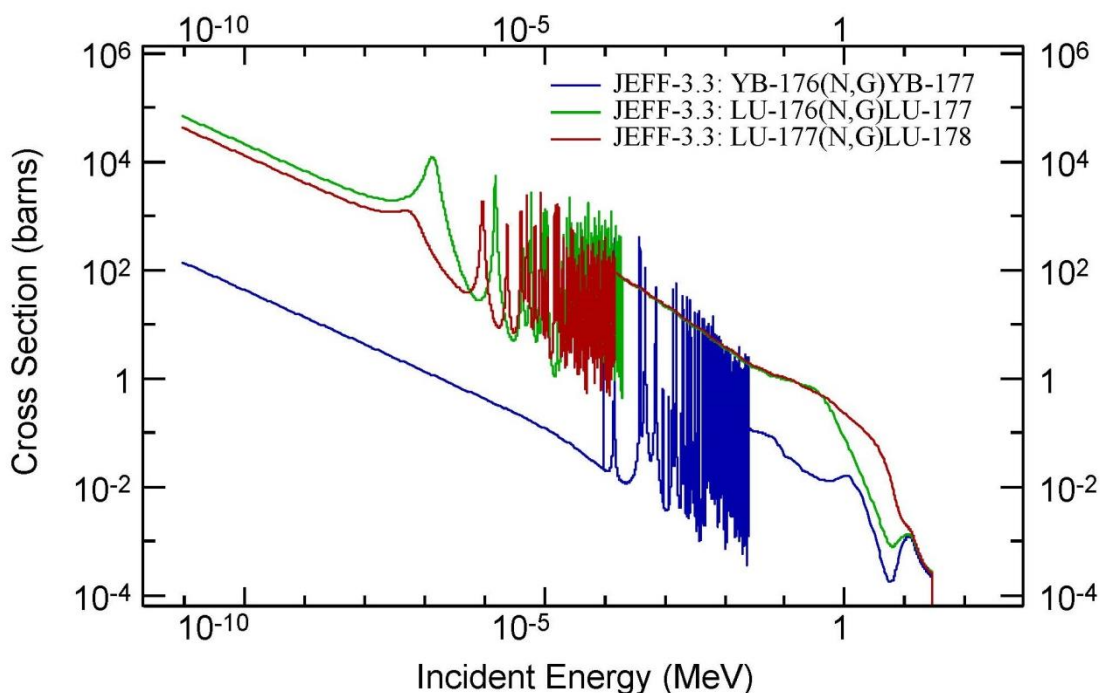


Рис. 8. Зависимости микроскопических сечений Yb^{176} , Lu^{176} , Lu^{177} от энергии нейтронов. Данные из [6]

Как видно из рисунка 8, сечения захвата нейтронов на мишенном изотопе Lu^{176} имеют высокие значения, как и сечения на целевом изотопе Lu^{177} , что говорит о скорейшем наступлении установившегося равновесного состояния.

Иная ситуация наблюдается с мишенным материалом Yb^{176} . Его сечения на порядок и более ниже, чем у целевого изотопа. Это в свою очередь сильно ограничивает максимально возможную наработку из-за выгорания целевого изотопа.

Еще одним фактором, который необходимо учитывать, является небольшой период полураспада равный 6,6 суток. В связи с этим периоды облучения, по сравнению с прошлыми случаями, скорректированы на 2 – 12 дней облучения и 2,5 дня выдержки после облучения.

На рисунке 9 представлена зависимость наработки Lu^{177} (из Lu^{176}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения.

Рисунок 9 показывает, что в группе 26 отмечается поведение, схожее с наработкой кобальта и никеля, – наступление «критической» активности. В рассматриваемых случаях до наработки лютеция имелась возможность предположить о величине «критической» удельной активности для конкретной группы, в данном случае – нет. Однако максимум среди всех групп наблюдается именно в этой группе и находится на уровне $\sim 58,5$ кКи/г, и нарабатывается в течение двух дней облучения.

В группах 23 и 25 наблюдается схожесть в наработке. Равновесный режим устанавливается на 6 – 8 день облучения равный, периоду полураспада целевого изотопа, что закономерно приводит к уменьшению удельной активности в последующих циклах облучения. Максимум удельной активности в этих случаях находится на уровне $\sim 25,5$ кКи/г.

Иной результат наблюдается в группах 15 – 21 и 24. В этих случаях равновесная концентрация не достигается и накопление происходит на всех циклах облучения.

Нельзя оставлять без внимания влияние выдержки в течение 2,5 дней. Расчеты показывают, что падение удельной активности составляет $\sim 20\%$ в среднем.

На рис. 10 приведён результат наработки лютеция на иттербии. При облучении в каждой группе не была достигнута ни «критическая» удельная активность, ни равновесное состояние. В связи с этим наработка лютеция практически в каждой группе происходит по одному сценарию — рост удельной активности на протяжении всего цикла облучения.

В группе 17 наблюдается максимальная удельная активность и составляет ~ 260 Ки/г. Также группа 15 близка к этим показателям с удельной активностью равной 250 Ки/г. Группа 16 близка по сценарию и темпам наработки к группам 15 и 17 и несколько отстает по величине максимальной удельной активности, но достижение максимума приходится на тот же период, что и в упомянутых группах.

Нельзя не отметить группу 26. Целевые показатели достигаются за весь период облучения (12 дней). Однако после 6 дней облучения отмечается заметный спад темпов роста удельной активности. Максимальные показатели удельной активности для этой группы находятся на уровне 170 Ки/г.

Как и в случае с наработкой на Lu^{176} , необходимо обратить внимание на потерю удельной активности при выдержке в 2,5 дня, средняя потеря по всем группам составляет $\sim 20\%$.

Исходя из расчетов и анализа полученных результатов можно сделать следующие выводы. Для наработки Lu^{177} через Lu^{176} , учитывая специфику применения и его период полураспада, выгодными для наработки являются группы 15 – 21, 25 (12 дней облучения), 23 и 24 (6 дней облучения) и 26 группа (2 дня облучения).

Для другой схемы наработки Lu^{177} через Yb^{176} наиболее высокая наработка в группах 15 – 17 и 26.

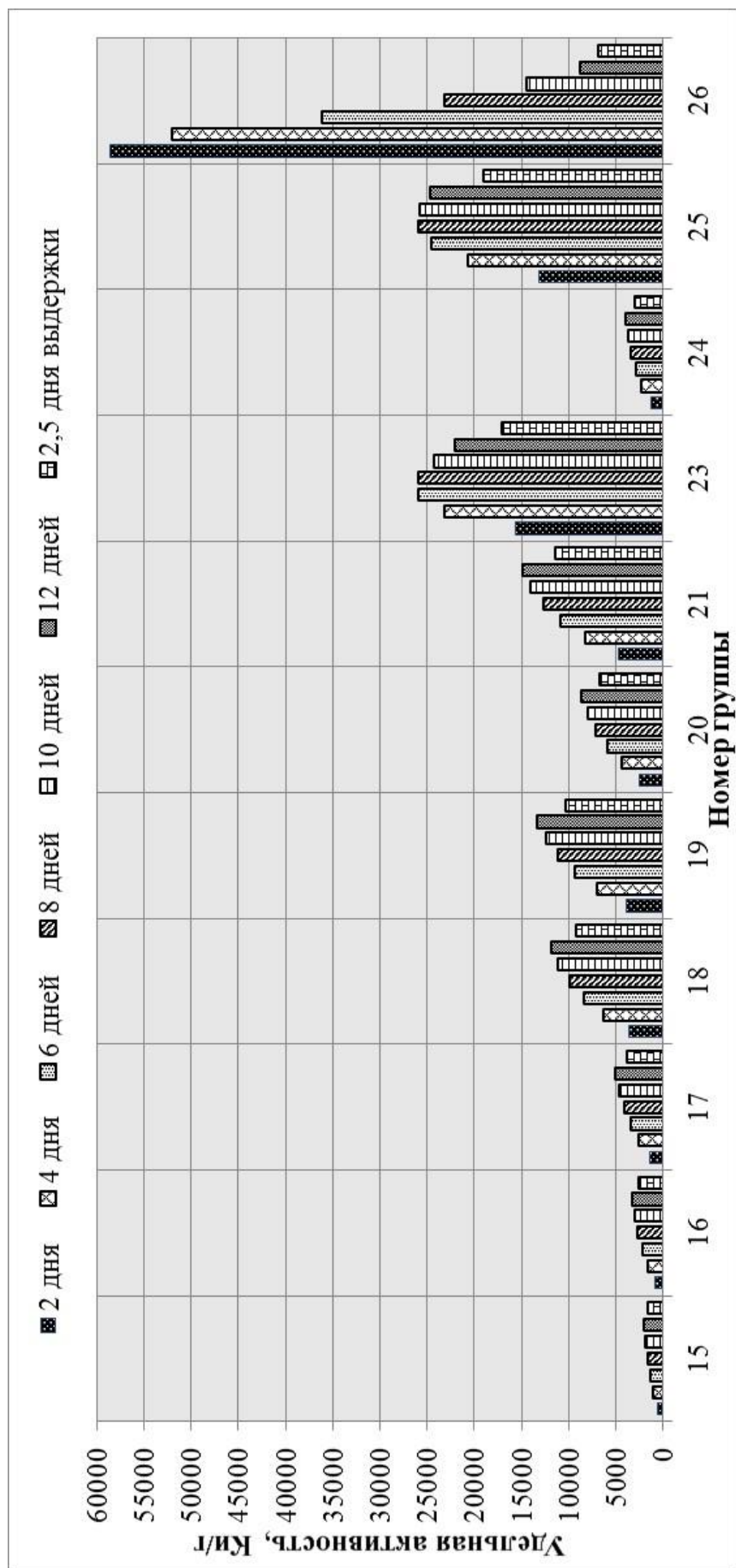


Рис. 9. Зависимости наработки Lu^{177} (из Lu^{176}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

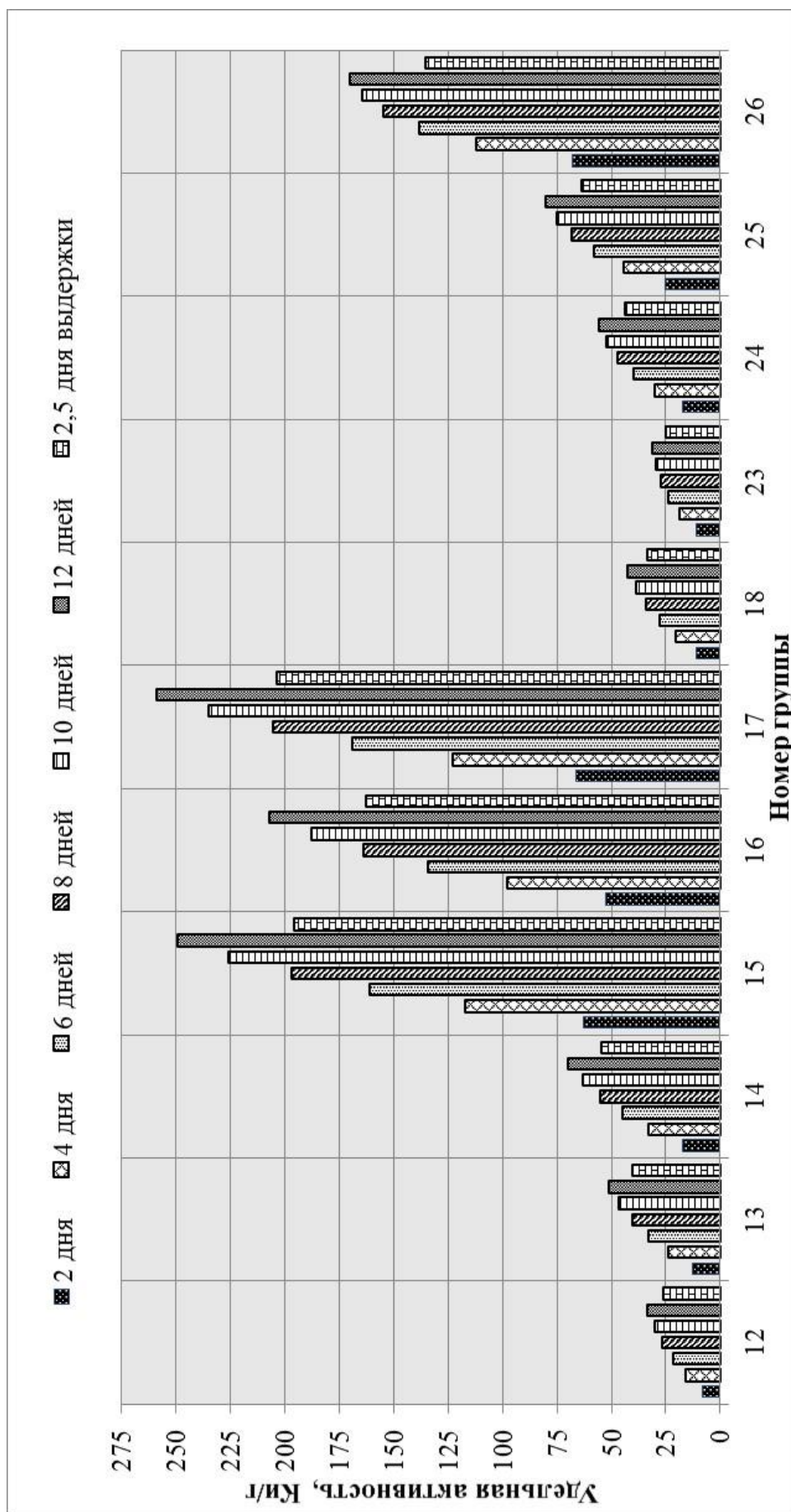


Рис. 10. Зависимости наработки Lu^{177} (из Yb^{176}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

Наработка Pu^{238}

Pu^{238} — один из самых востребованных радионуклидов для генерации тепла. Pu^{238} используется в радиоизотопных электрических генераторах (РИТЭГ), предназначенных для энергообеспечения космических аппаратов и удаленных автономных установок, расположенных в труднодоступных регионах, например, в Арктике. Для производства необслуживаемых надежных источников энергии Pu^{238} не имеет аналогов по столь высокому удельному тепловыделению, длительному периоду полураспада и отсутствию жесткого γ -излучения, препятствующему штатной работе электронной аппаратуры. Pu^{238} является уникальным источником длительного автономного энергообеспечения в различных устройствах, работающих в удаленных регионах Земли и в космосе.

Рынок Pu^{238} является активно развивающимся. США, Китай, Япония, ЕС и РФ объявили о планах создания баз на Луне и на Марсе. Такая активная позиция ведущих государств в освоении Луны связана, в частности, и с имеющимися на Луне запасами He^3 , которые могут быть использованы в термоядерных реакторах, чтобы обеспечить землян энергией на несколько тысячелетий вперед. Отмеченная перспектива космических исследований и освоения дальних регионов Земли потребует создания многочисленных источников автономного энергообеспечения длительного действия. При этом ожидаемый спрос на Pu^{238} , по крайней мере, в разы превышает существующий темп его наработки, в основном, на ядерных установках исследовательского характера. Наработка Pu^{238} активно развивается и в связи с масштабными планами Российской Федерации по освоению удаленных регионов Земли и космоса, что соответствует государственной стратегии научно-технологического развития РФ [8].

В работе рассматривается 2 схемы наработки Pu^{238} :

1. Облучение нейтронами изотопа $\text{Np}^{237}(\text{n}, \gamma)\text{Np}^{238} \rightarrow \text{Pu}^{238}$;
2. Облучение нейтронами изотопа $\text{Am}^{241}(\text{n}, \gamma)\text{Am}^{242} \rightarrow \text{Cm}^{242} \rightarrow \text{Pu}^{238}$.

В первую очередь рассмотрим наработку плутония через нептуний. Исходя из схемы наработки, необходимо рассмотреть сечения взаимодействия на Np^{237} (рис. 11). По рисунку 11 видно, что практически на всем участке энергий сечение захвата превалирует над делением, за исключением энергий выше 0,5 МэВ. Эта область не выгодна для наработки, так как сечение деления превышает сечение захвата.

Из следующих ступеней цепочки для наработки плутония на нептунии следует, что необходимо избежать любых взаимодействия на Np^{238} , чтобы он мог перейти в целевой изотоп путем β -распада (рис. 12).

Сечение захвата на Np^{238} находится на том же уровне, что и у Np^{237} , тогда как сечение деления приблизительно на порядок выше, чем сечение захвата.

Конечной ступенью является рассмотрение сечений взаимодействий на целевом изотопе (рис. 13). В целом практически на всей области энергий сечение захвата Pu^{238} выше, чем его же сечение деления.

Сечения захвата на Pu^{238} в тепловой области выше, чем сечения захвата у Np^{237} и Np^{238} , но в то же время ниже сечения деления Np^{238} .

Исходя из графиков сечений, можно сделать вывод о том, что необходимо искать область с минимальными сечениями взаимодействия на целевом изотопе (Pu^{238}), но в то же время с максимальными сечениями захвата на Np^{237} .

Этим критериям соответствует область от 10^{-6} до 10^{-3} МэВ. Именно в этой области энергий у Pu^{238} наблюдаются наименьшие сечения взаимодействия, напротив можно сказать, что резонансная структура подразумевает сечения, близкие к максимальным значениям, и имеется вероятность попасть в эту область. Учитывая этот факт, эта область имеет больший потенциал к наработке целевого изотопа.

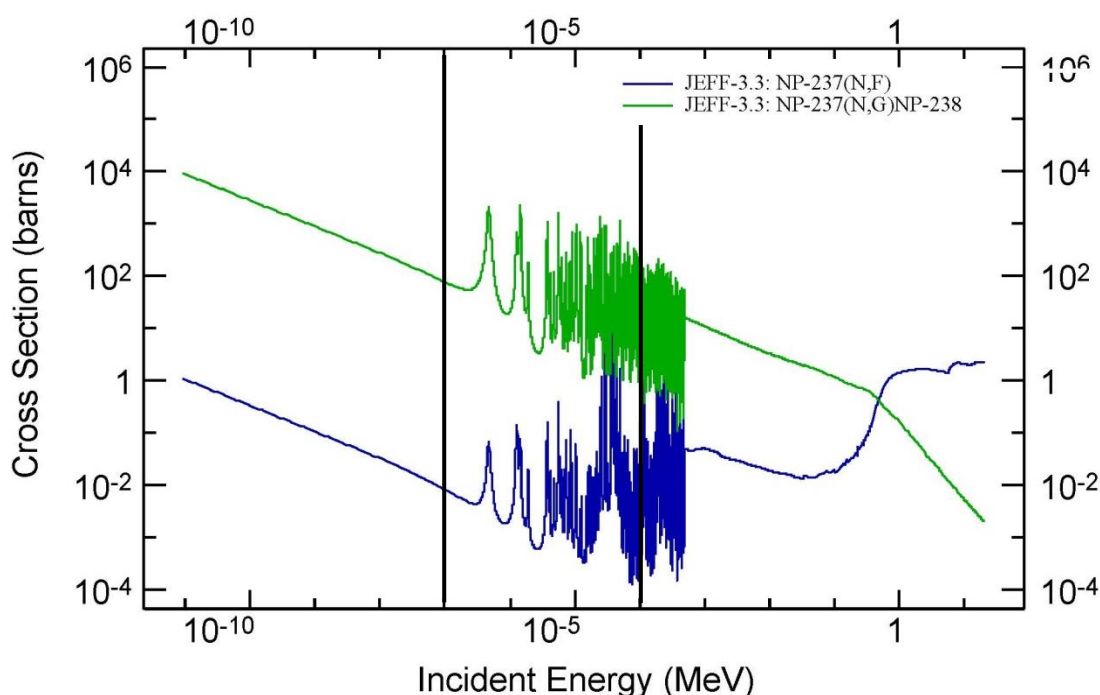


Рис. 11. Зависимости микроскопических сечений Np^{237} от энергии нейтронов. Данные из [6]

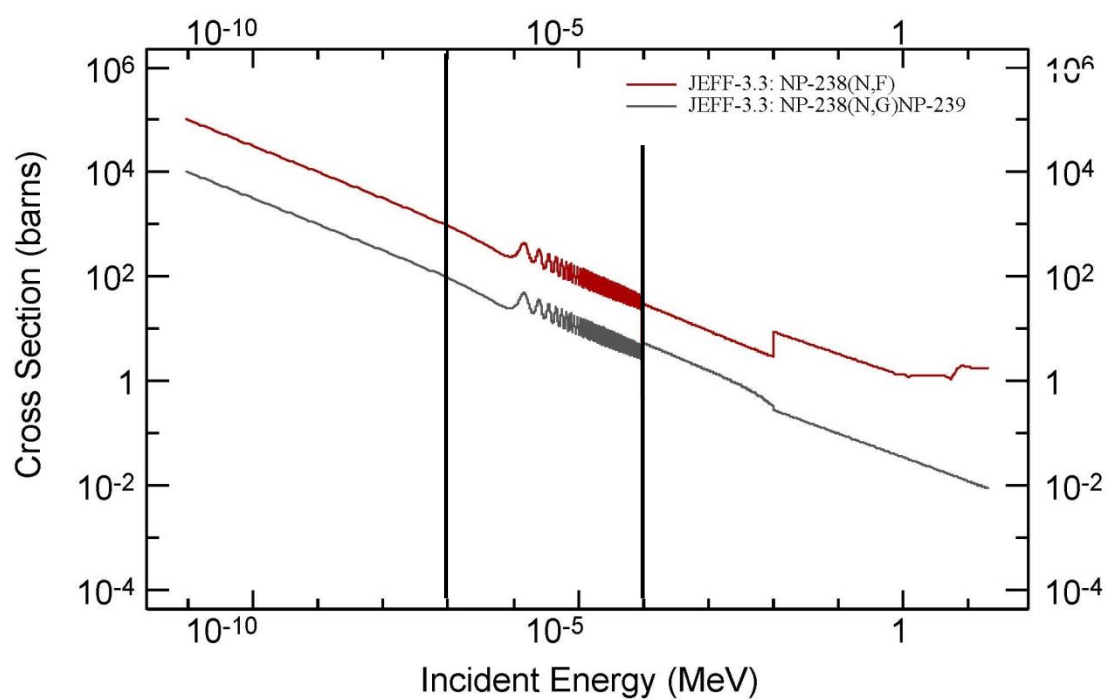


Рис. 12. Зависимости микроскопических сечений Np^{238} от энергии нейтронов. Данные из [6]

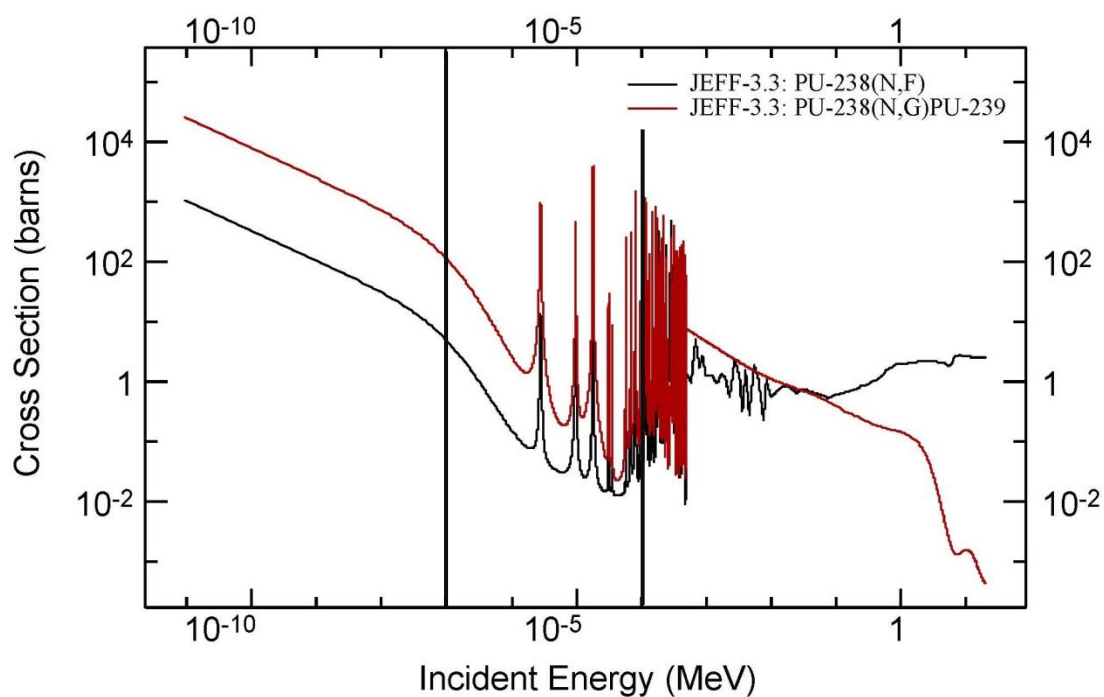


Рис. 13. Зависимости микроскопических сечений Pu^{238} от энергии нейтронов. Данные из [6]

На рисунке 14 представлены зависимости наработки Pu^{238} (из Np^{237}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения.

По рисунку явно видно группу 19, в которой отчетливо выделяется максимум среди остальных групп. Максимум, который получается за год облучения, находится в состоянии, близком к равновесному для этой группы. Значения удельной активности в пике $\sim 15,7$ Ки/г. Однако не столь ошибочным будет и рассмотрение получаемой удельной активности, и за полгода в этой же группе его величина составляет ~ 15 Ки/г.

Также потенциально привлекательными к наработке проявляют себя группы 18, 21, 23. Их поведение явно охарактеризовано достижение «критической» удельной активности. Максимумы величин наработки находятся в пределах от 10 до 12,5 Ки/г. Максимум удельной активности в этих группах достигает за полгода, а далее наблюдается резкий спад активности в течение каждого последующего цикла облучения. Темпы падения от 15% за один цикл облучения. Это обусловлено высокими сечениями взаимодействия всех материалов (включая мишенный), по этой причине на последующих циклах облучения количество мишенного материала на порядки меньше, чем в начальном состоянии, и в связи с этим невозможно без дозагрузки мишенного материала поддерживать такую удельную активность.

Без внимания также нельзя оставлять и группы 13 – 15. В них наблюдается схожее поведение в процессе наработки. Максимум в этих группах наблюдается за 1,5 – 2 года облучения. По графикам этих групп можно сказать, что при более длительном облучении эти группы войдут в состояние равновесия.

Из-за большого периода полураспада (на несколько порядков превышающий время выдержки) время выдержки не оказывает влияние на удельную активность.

Исходя из полученных результатов можно сделать следующие выводы. Наиболее предпочтительной для наработки является группа 19. Не стоит также упускать из виду группы 13 – 15, 18, 21, 23. Они имеют потенциал несколько ниже, чем в группе 19, но величины и характер получения целевого изотопа являются приемлемыми.

Другая схема наработки предоставляет возможность наработки из Am^{241} . Цепочка наработки в этом случае усложняется наличием еще одного звена в схеме наработки.

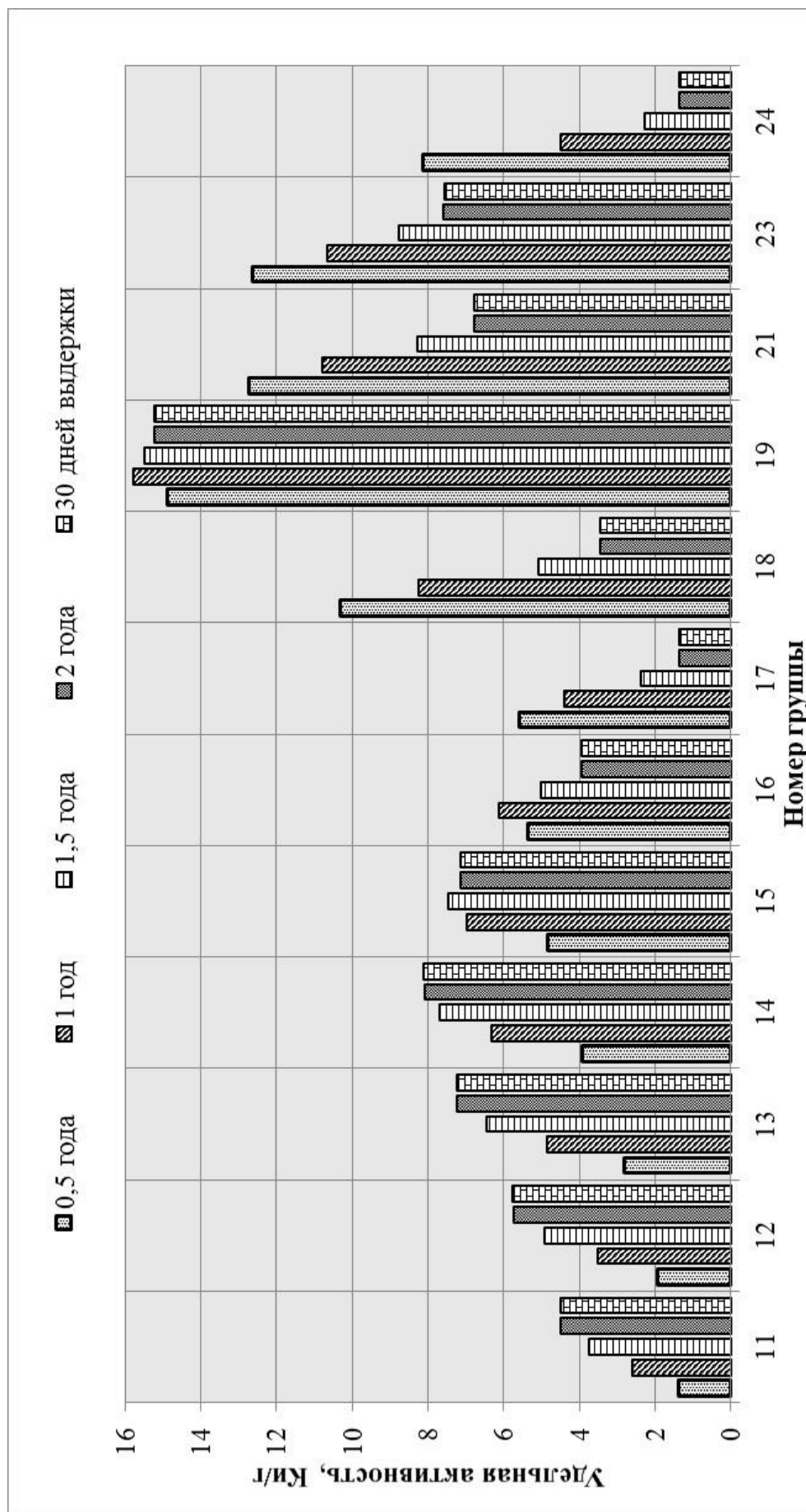


Рис. 14. Зависимости наработки Pu^{238} (из Np^{237}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

Необходимо создать такие условия, чтобы Am^{241} испытал реакцию захвата и следом после превращения в Am^{242} не испытывал никаких взаимодействий, либо испытывал в минимальном количестве по всей цепочке распада (Cm^{242} и Pu^{238} в том числе). Это значит, что необходимо подобрать такую область, в которой будет соблюдаться баланс высокого сечения мишенного материала и низких сечений изотопов в цепочке распада.

Вполне очевидно и видно из рисунков 15 – 17, что сечения взаимодействия в тепловой области высоки. В связи с этим имеется риск того, что большая часть мишенного материала перейдет в Am^{242} и начнет взаимодействовать (захватывать нейтроны либо делиться). Этот вариант не подходит по отмеченным выше критериям.

Вариант с областью до резонансов имеет перспективу, но тут, в свою очередь, могут возникнуть проблемы со скоростью наработки, а это может повлечь выгорание целевого изотопа (Pu^{238}).

Как итог, предположительно выгодной областью наработки является область энергий от 10^{-6} до 10^{-3} МэВ.

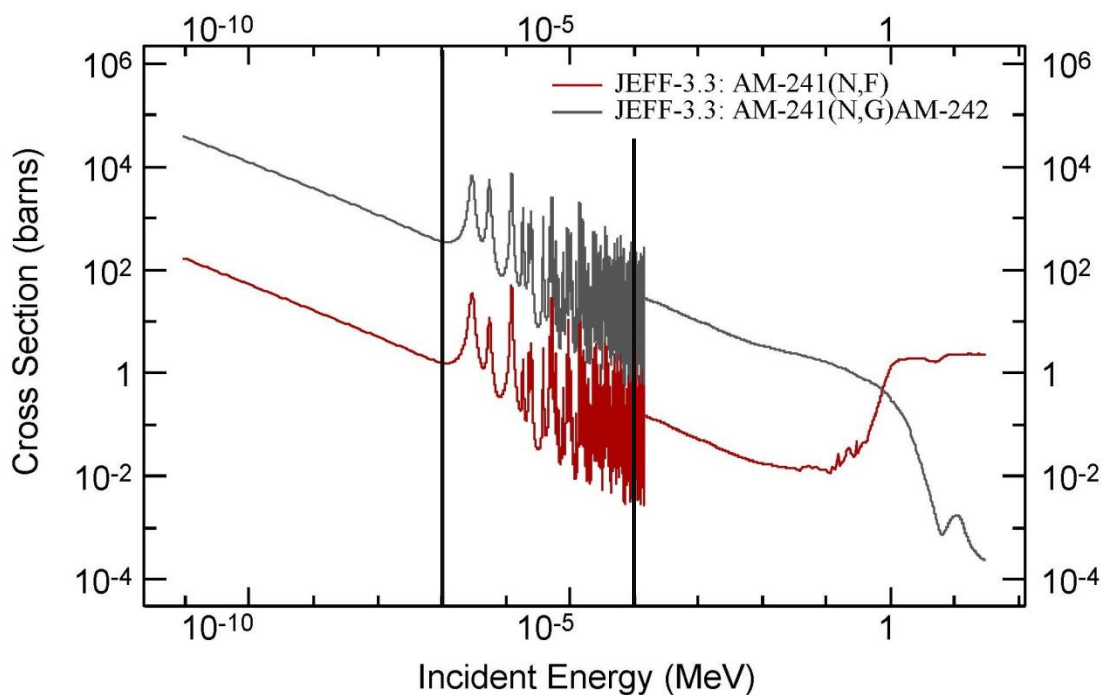


Рис. 15. Зависимости микроскопических сечений Am^{241} от энергии нейтронов. Данные из [6]

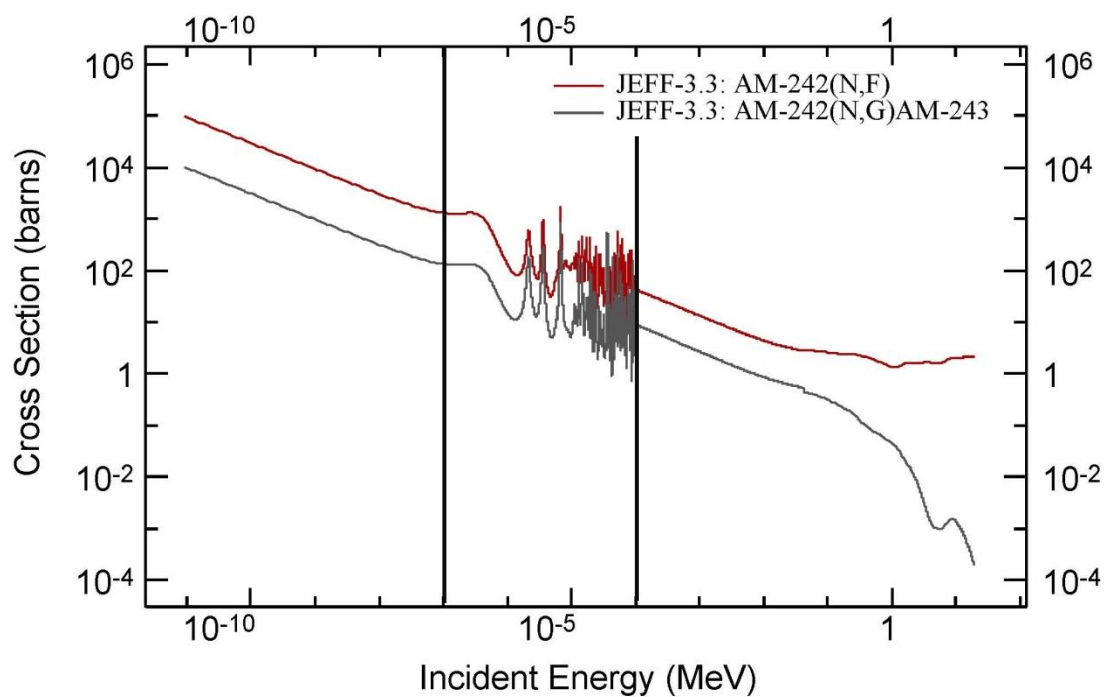


Рис. 16. Зависимости микроскопических сечений Am^{242} от энергии нейтронов. Данные из [6]

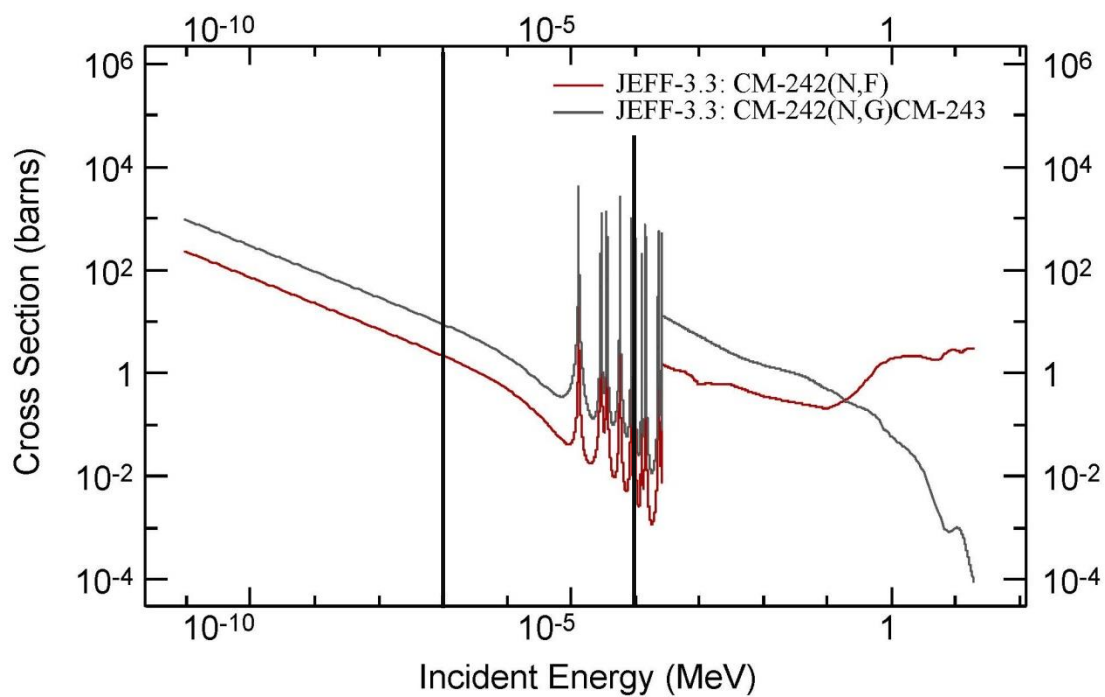


Рис. 17. Зависимости микроскопических сечений Cm^{242} от энергии нейтронов. Данные из [6]

Как уже отмечалось ранее, схема наработки плутония через америций отличается принципиально тем, что в ней на одно звено больше, чем в схеме через нептуний.

Целевым звеном в данной цепочке является Cm^{242} , именно этот изотоп является основополагающим в наработке Pu^{238} благодаря α -распаду. В связи с этим возникает необходимость отслеживать не только конечный результат наработки (удельную активность Pu^{238}), но и материнский изотоп Cm^{242} . Это необходимо для рассмотрения динамики поведения (распада и захвата) этого нуклида и выявления предпочтительных групп наработки.

На рисунке 18 представлены зависимости наработки Pu^{238} (из Am^{241}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения, на рисунке 19, соответственно, — зависимости наработки Cm^{242} (из Am^{241}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения.

В первую очередь рассмотрим рисунок 19, ведь исходя из удельной активности кюрия и её динамики совместно с рисунком 18 будет понятно поведение данного изотопа.

Из рисунка 19 можно увидеть ярко выраженные максимумы, расположенные в эпитепловой области. Их величины достигают порядка 1,25 кКи/г. Огромный спад активности на последующих циклах облучения можно связать не только с «критической» активностью, но и с периодом полураспада ~ 163 дня.

Высокая удельная активность наблюдается и в группах 17 – 19, 21 – 24 (рис. 19).

По рисунку 18 видно 2 явно выделяющихся максимума в 21 и 23 группе с величиной $\sim 6,5$ Ки/г, которая достигается за 1 год облучения. Резкие скачки активности после 1 цикла облучения обусловлены распадом из кюрия (исходя из рис. 19 в этих группах его количество достаточно велико).

Группа 19, судя по поведению накопления входит, в состояние равновесия после 1,5 лет облучения, и удельная активность держится на уровне 4,8 Ки/г. Анализируя поведение в этой группе на рис. 18, и 19, можно охарактеризовать наступление равновесия следующим фактором: так как удельная активность кюрия стабильно падает, то концентрация америция достигает своего минимума. При всем этом сечения взаимодействия Pu^{238} в этой группе не столь велики, судя по отсутствию убыли целевого изотопа. Однако это состояние чревато тем, что из-за отсутствия дозатрубки америция накопление плутония будет практически нулевым.

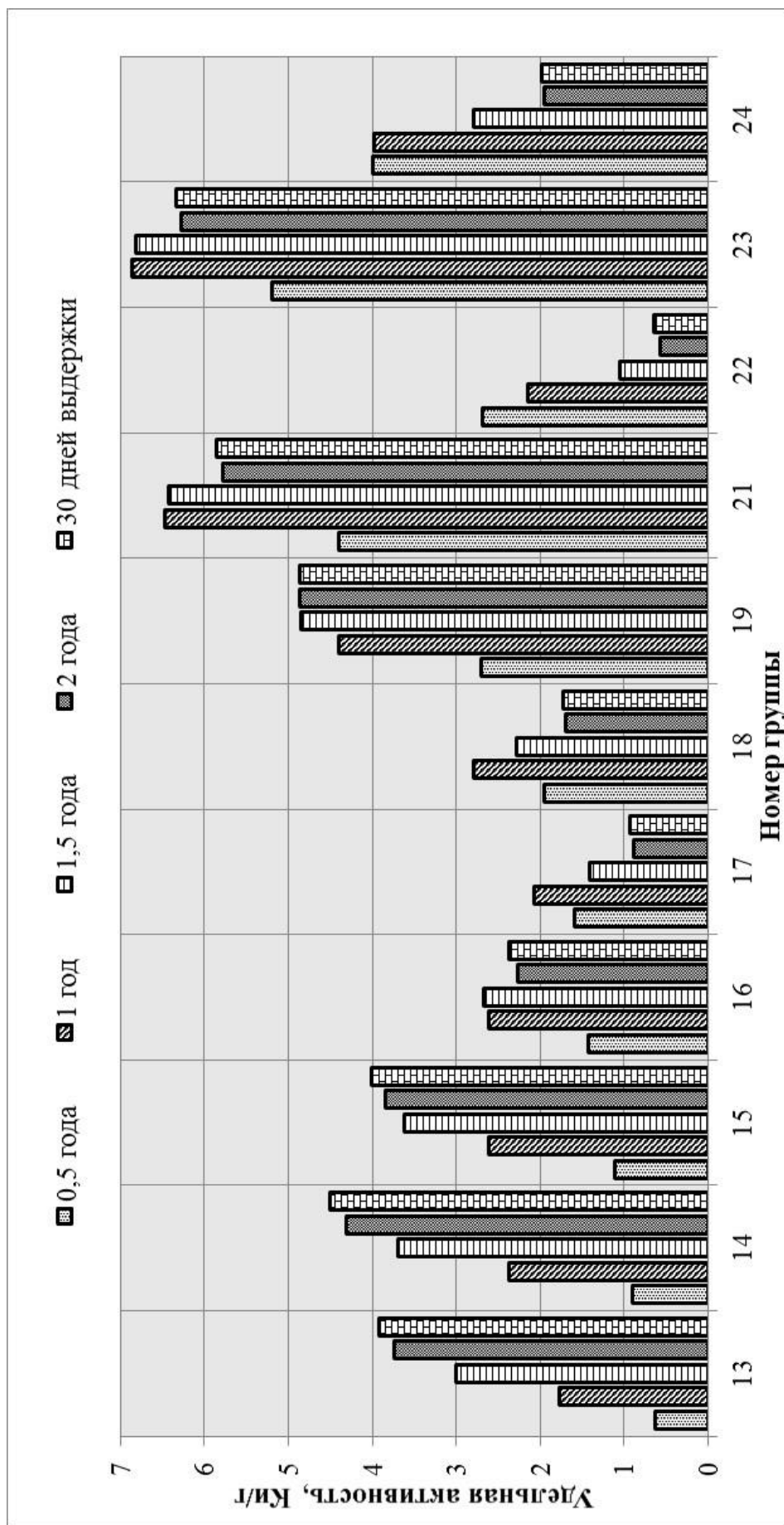


Рис. 18. Зависимости наработки Pu^{238} (из Am^{241}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

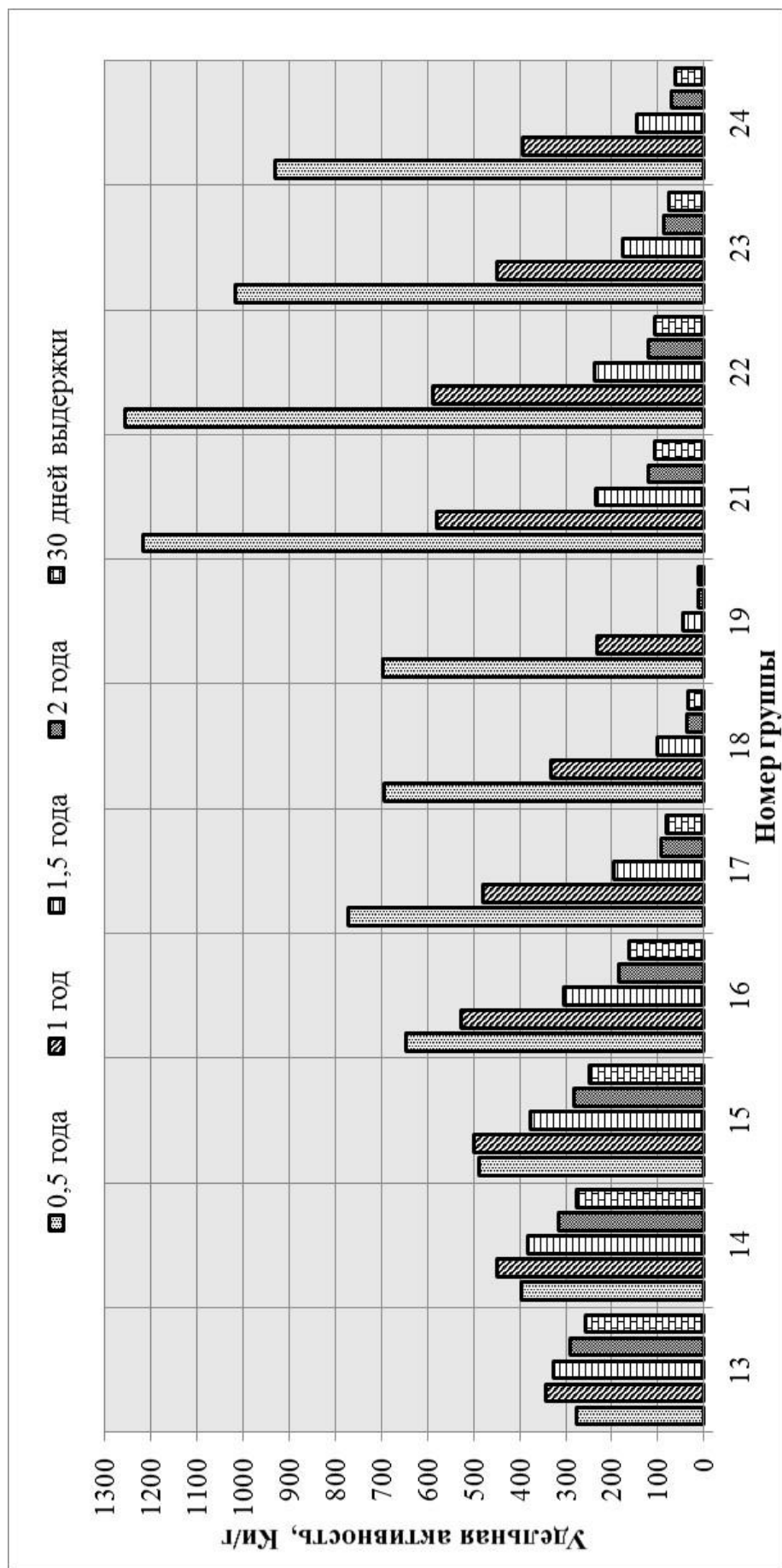


Рис. 19. Зависимости наработки Cm^{242} (из Am^{241}) от энергетической структуры нейтронного потока и времени облучения

Также нельзя обойти вниманием группы 13 – 15: из поведения на графике по накоплению кюрия можно заметить, что пики удельной активности наблюдаются через год облучения, при этом на следующих циклах облучения наблюдается спад, но не такой большой, как в иных ранее рассматриваемых группах. Эти потери по большей мере связаны с вероятностью захвата/деления (из-за увеличения количества кюрия), нежели чем его распадом. Именно поэтому темпы роста удельной активности сохраняются (рис. 18) и достигают в пике от 3,9 до 4,5 Ки/г за весь цикл облучения, включая 30-дневную выдержку.

Влияние выдержки в случае наработки через америций скорее положительное. Это связано с тем, что оставшийся кюрий может практически беспрепятственно перейти в плутоний.

Исходя из полученных результатов, можно сделать следующие выводы. Наиболее предпочтительными для наработки группами являются 21 и 23. Группы 13 – 15 и 19 имеют удельную активность несколько ниже, чем максимально возможные, на всем энергетическом интервале, но также являются перспективными.

Подход к разработке универсальных облучательных устройств с мультимишенной концепцией

В теоретических изысканиях, а также в практической плоскости зачастую рассматриваются/используются мономишенные облучательные устройства. На этом фоне интересной идеей является концепция мультимишенного облучательного устройства, смысл которого заключается в подборе таких пар «мишень — мишень», «целевой нуклид — целевой нуклид», которые позволят набирать более одного целевого изотопа.

На первом этапе необходимо рассмотреть наработку ряда целевых изотопов, в частности энергетическую зависимость эффективности наработки изотопов. По результатам должны быть проанализированы эффективные группы наработки и сформированы пары «мишень — мишень», подходящие друг другу по спектральным характеристикам (дополнять слабые группы), или это должна быть пара «замедлитель(мишень) — мишень» для улучшения спектральных характеристик либо параллельной наработки в мишени и замедлителе.

Так как большинство искусственных изотопов набирается в тепловом спектре, то следующим шагом необходимо рассмотреть спектр, получаемый после использования замедлителя, тем самым определив эффективный материал для конкретной пары целевых изотопов.

Следом необходимо рассмотреть возможность модификации реального спектра до уровня, необходимого для эффективной наработки.

В итоге должно быть сформулировано облучательное устройство, реализующее концепцию мультимишенности.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Идея масштабности наработки того или иного изотопа неразрывно связана с базисом эффективности накопления, а именно:

- 1) высокие сечения мишенного материала;
- 2) низкие сечения целевого изотопа;
- 3) высокая интенсивность (плотного потока нейтронов);
- 4) энергетическое распределение спектра нейтронов;
- 5) время облучения и выдержки.

Учет и контроль этих параметров практически гарантирует получение сведений о наработке конкретного изотопа.

Полученные распределения наработки по группам с учетом времени дают явное представление об эффективности накопления на всем энергетическом интервале, что даёт возможность сделать вывод о предпочтительных спектральных характеристиках конкретных нуклидов.

Выводы об эффективности пар мишенных материалов, сделанные на основе максимальной удельной активности, могут быть подвергнуты корректировке, так как высокая удельная активность не является исчерпывающим и всеобъемлющим параметром для конечного результата. Зачастую во внимание принимаются такие параметры, как:

- 1) изотопная чистота,
- 2) возможность отделения целевого нуклида от ненужных примесей/мишенного материала,
- 3) энерговыделение,
- 4) логистические издержки (для короткоживущих изотопов),
- 5) необходимый объем,
- 6) необходимая удельная активность.

Полученные величины также могут быть скорректированы по причине неучета эффекта блокировки сечений, это может внести свой вклад в конечные значения удельных активностей.

В результатах имеются случаи как достижения равновесного состояния, «критического», так и недооблученного. В случае с последним имеется

вопрос о дополнительном исследовании зависимости от времени, но в рамках этого исследования данный вопрос не рассматривается, ориентируясь на заданные временные рамки.

Вполне ожидаемо изменение характера поведения при наработке с учетом выдержки между циклами облучения, к примеру, в случае наработки плутония через америций.

Полные версии изображений (рис. 2, 6, 7, 9, 10, 14, 18, 19) представлены в приложении в соответствующем порядке.

Итог работы заключается в следующем:

1. Приведены и проанализированы детальные зависимости сечений от энергии нейтронов.
2. Проведены расчётные исследования зависимости эффективности наработки различных изотопов от структуры спектра нейтронного потока.
3. Выполнен анализ полученных результатов, в рамках которого отмечена эффективность наработки радионуклидов в различных группах.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Радиоизотопные автономные источники питания (АИП): Аналитический отчет / *Архангельский Н.В., Пономарев А.В., Птицын П.Б., Сафиканов Д.И.* — М.: ЦАИР, частное учреждение «Наука и инновации», 2022. — 98 с.
2. *Мантуров Г.Н., Николаев М.Н., Цибуля А.М.* Система групповых констант БНАБ-93. Часть 1. Ядерные константы для расчета нейтронных и фотонных полей излучений // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядерные константы, Вып.1, 1996, с. 59-98.
3. *Тормышев И.В.* Программный комплекс для расчета радиационных характеристик топлива и конструкционных материалов. ISKRA, версия 1.0 — № 2020660280; заявл. 09.09.2020; опубл 26.10.2020. — 1 с.
4. *Косякин Д.А., Коробейников В.В., Стогов В.Ю.* Исследование зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры плотности нейтронного потока // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерно-реакторные константы, 2022, № 1, с. 5–15.
5. СТРАНА РОСАТОМ. Кобальт-60: точки роста. — Режим доступа: <https://strana-rosatom.ru/2017/11/30/kobalt-60-tochki-rosta/>. Дата обращения 10.11.2022.
6. Evaluated Nuclear Data File (ENDF). Database Version of 2022-10-07 — Режим доступа: <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>. Дата обращения 20.09.2022.
7. Получение препарата никеля-63 для источников тока / *Ю. Г. Топоров, В. А. Тарасов, Е. Г. Романов [и др.]* // Сборник трудов АО ГНЦ НИИАР. — 2018. — № 2. — С. 34-40. — EDN YNRELB.
8. Российский научный фонд. — Режим доступа: <https://rscf.ru/project/22-22-00287/>. Дата обращения 10.11.2022.

ПРИЛОЖЕНИЕ

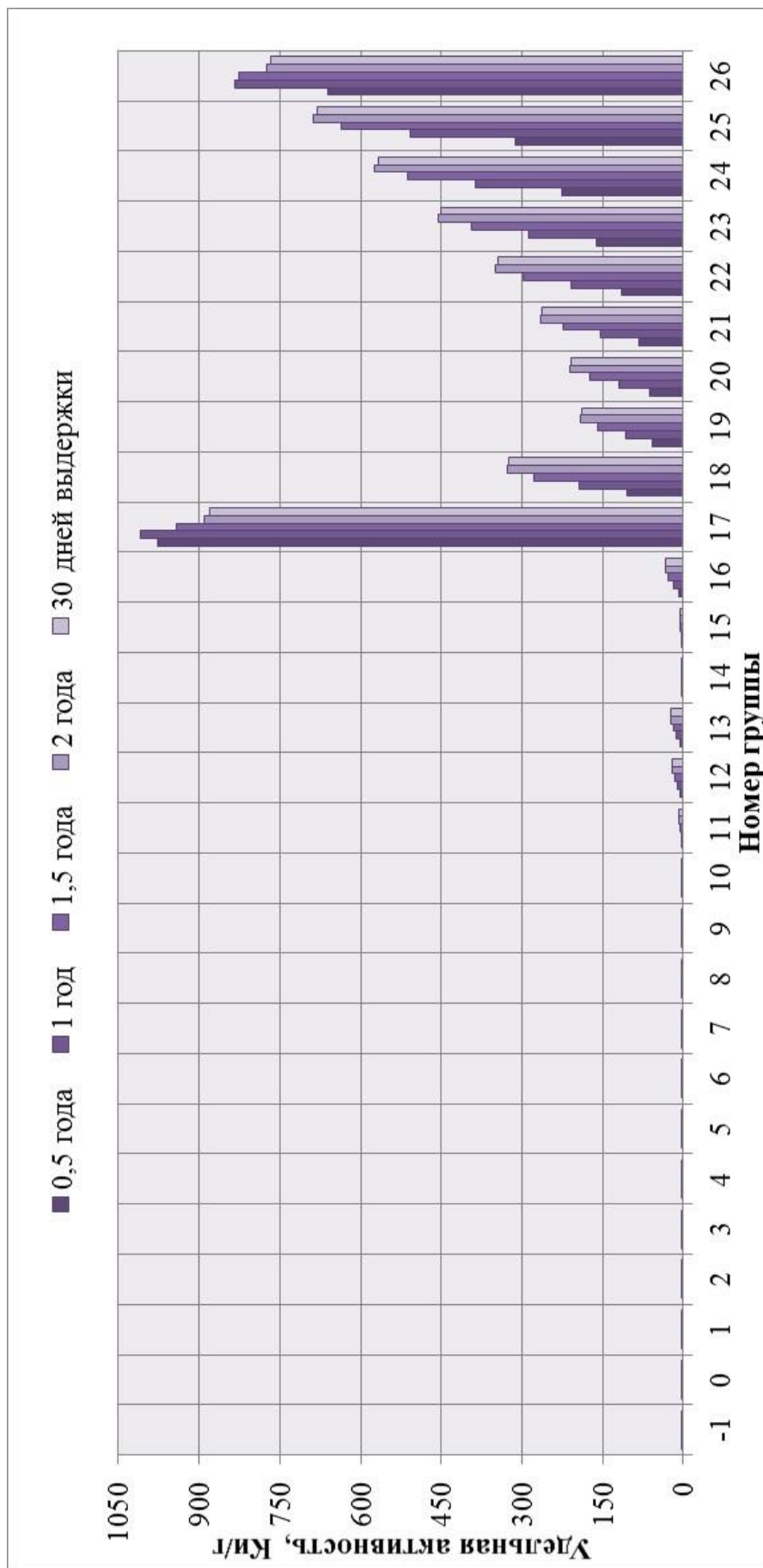


Рис. 20. Зависимость наработки Co^{60} от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

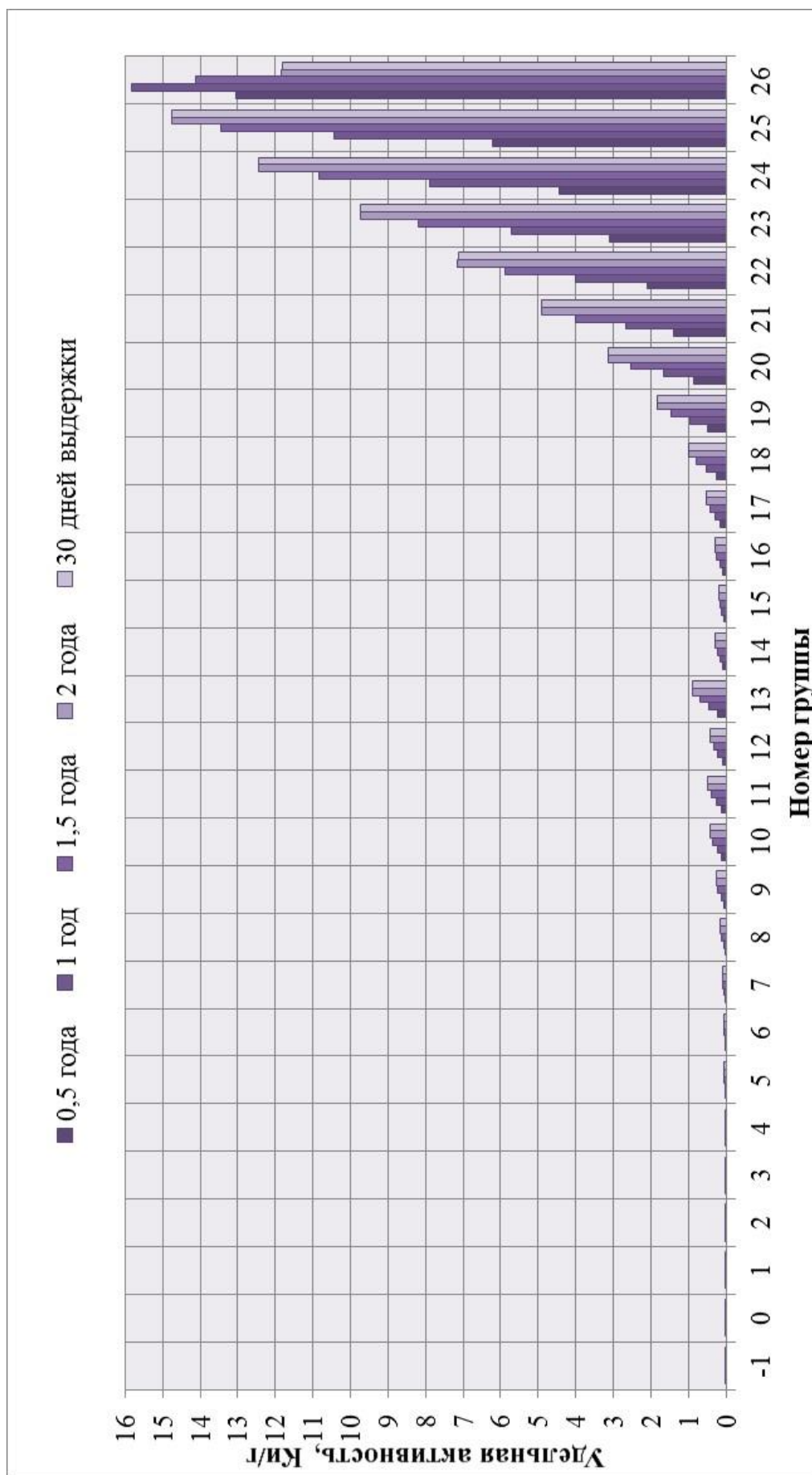


Рис. 21. Зависимость наработки Ni^{63} (из Ni^{62}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

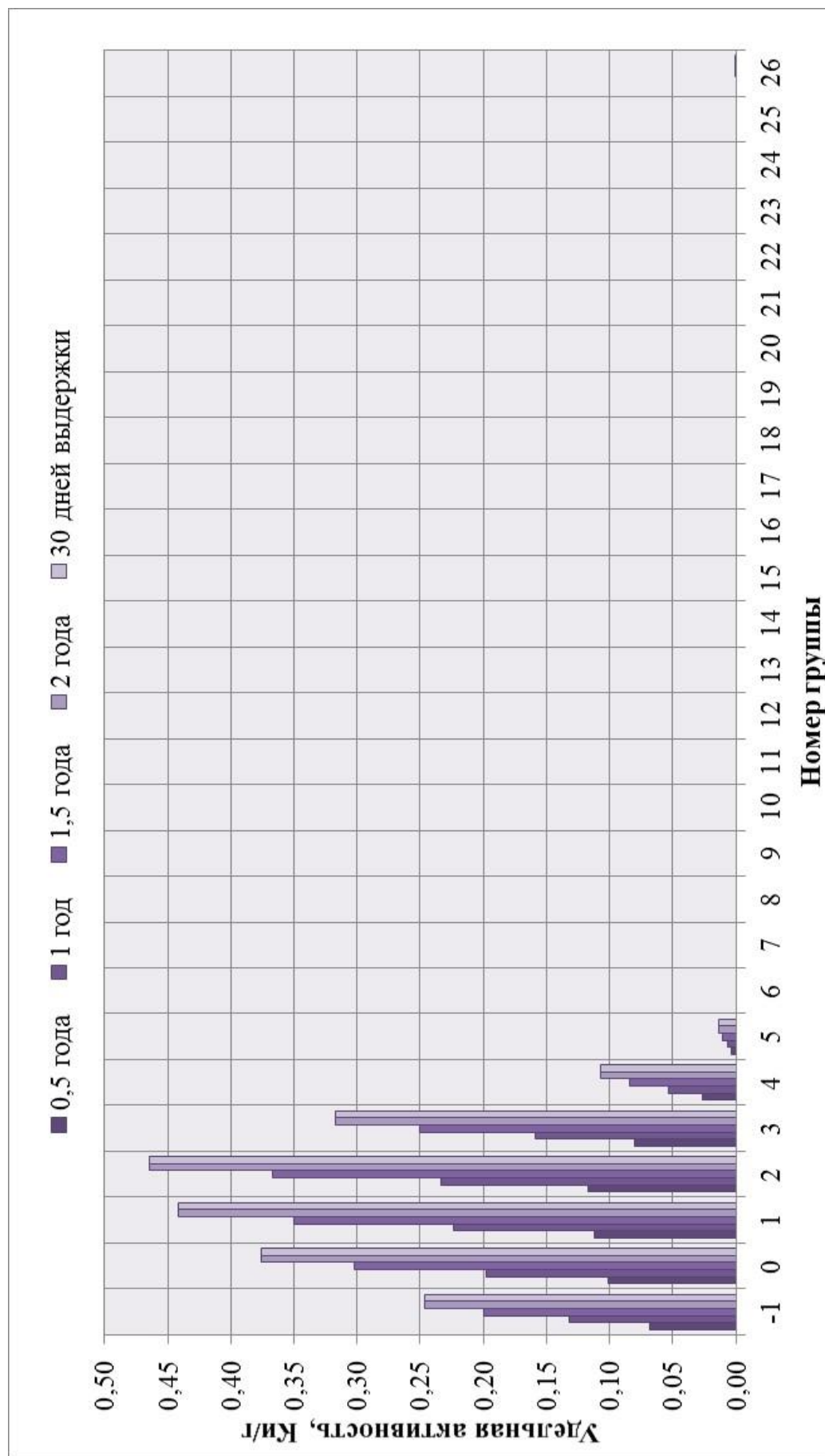


Рис. 22. Зависимость наработки Ni^{63} (из Cu^{63}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

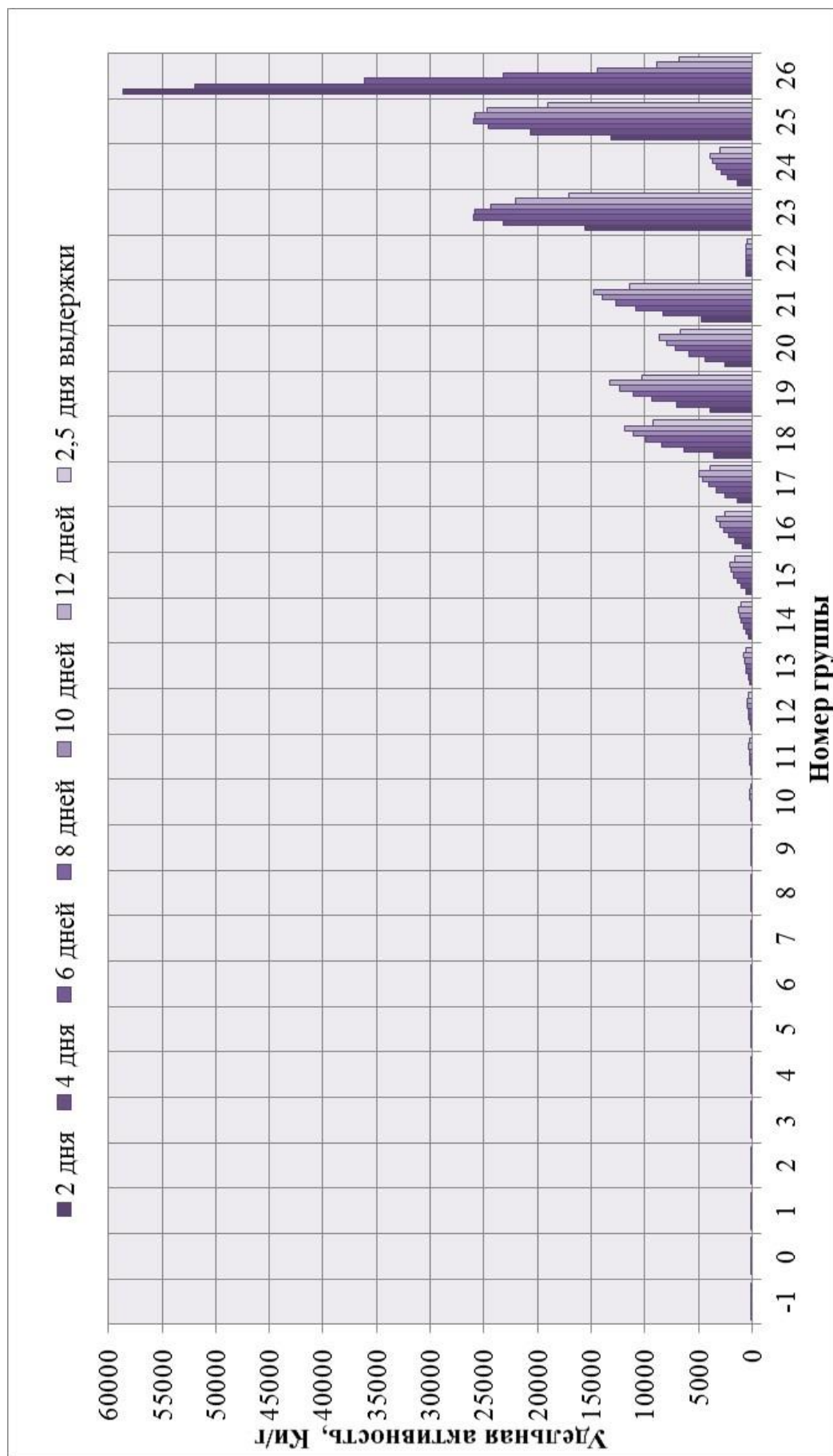


Рис. 23. Зависимости наработки Lu^{177} (из Lu^{176}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

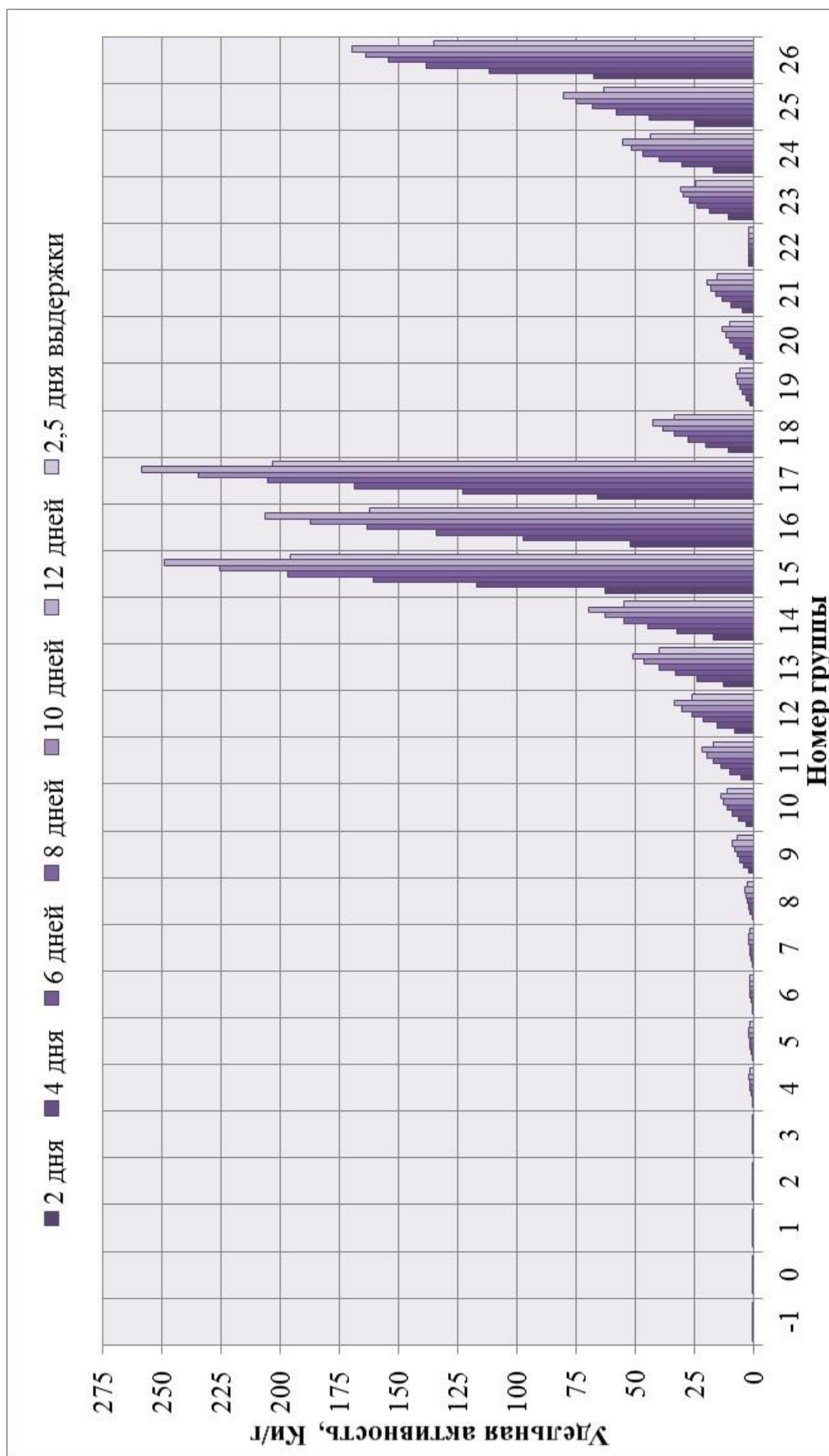


Рис. 24. Зависимости наработки Lu^{177} (из Yb^{176}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

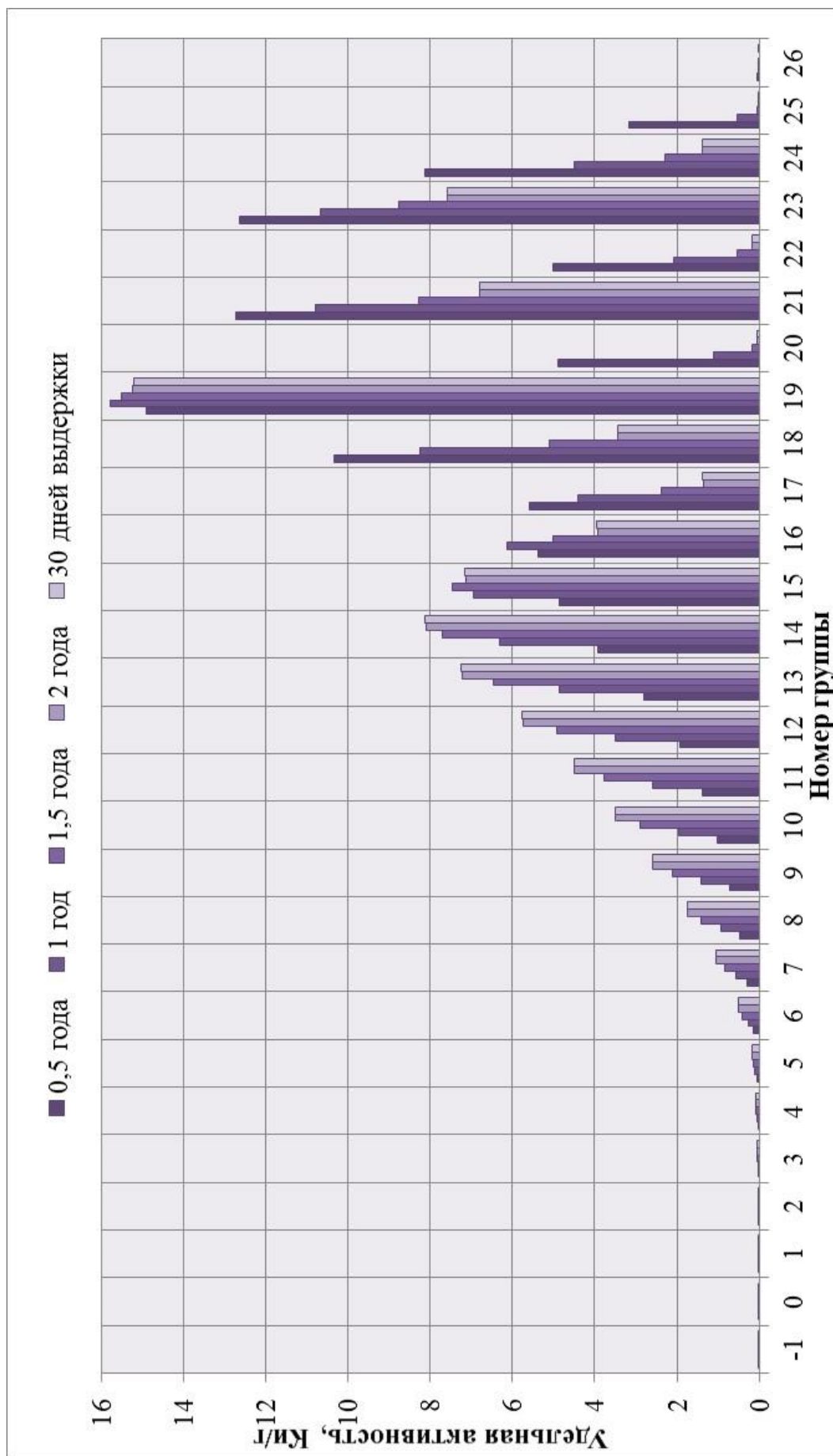


Рис. 25. Зависимости наработки Pu^{238} (из Np^{237}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

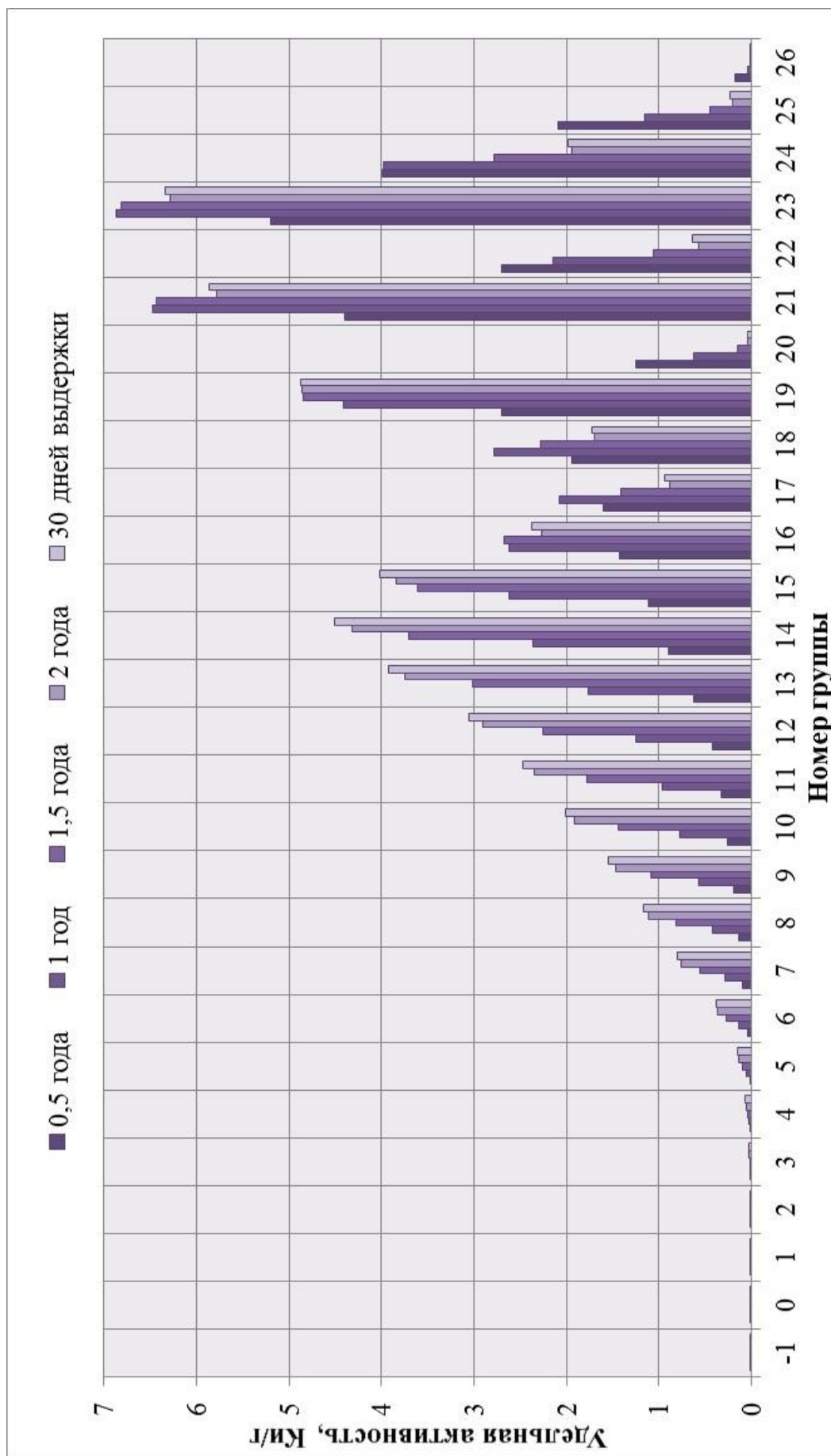


Рис. 26. Зависимости наработки Pu^{238} (из Am^{241}) от энергетической структуры спектра нейтронного потока и времени облучения

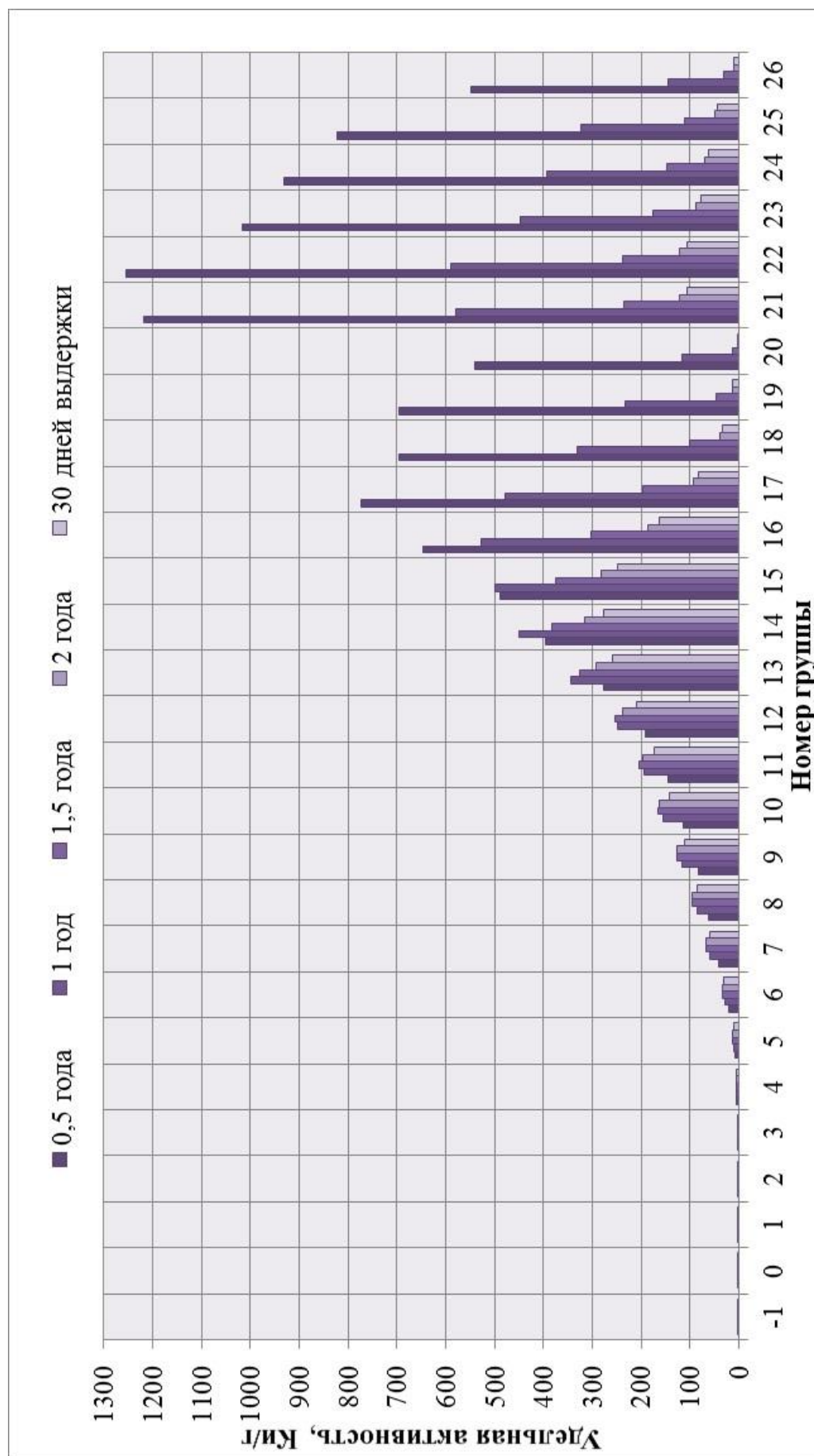


Рис. 27. Зависимости наработки Cm^{242} (из Am^{241}) от энергетической структуры нейтронного потока и времени облучения