

УДК 550.835.212

## ТРАНСМУТАЦИЯ Am-241 НА СИНХРОЦИКЛОТРОНЕ ПЕТЕРБУРГСКОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ

© 2024 г. И. Е. Алексеев<sup>1</sup>, К. В. Ершов<sup>1, 2, \*</sup>

<sup>1</sup> Акционерное общество «Радиевый институт имени В.Г. Хлопина», Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Федеральное государственное бюджетное учреждение «Петербургский институт ядерной физики имени Б.П. Константинова Национального исследовательского центра "Курчатовский институт"», Гатчина, Россия

\* E-mail: [ershov.k@khlopin.ru](mailto:ershov.k@khlopin.ru)

Поступила в редакцию 23.05.2024

После доработки 25.06.2024

Принята к публикации 31.07.2024

Ранее авторами была выполнена оценка потока нейтронов от синхротрона Петербургского института ядерной физики для различных конфигураций замедлителя вблизи внутренней мишени, используемой для создания потока нейтронов при помощи реакции спалейшн. Выполнена успешная попытка трансмутации Am-241.

DOI: 10.31857/S0367676524110226, EDN: FJXJTD

### ВВЕДЕНИЕ

В отработанном ядерном топливе (ОЯТ) содержатся десятки радионуклидов. Часть из них может быть использована после переработки топлива, часть попадает в отходы. При этом отходы, содержащие короткоживущие изотопы, представляют наибольшую опасность, но быстро распадаются, долгоживущие радионуклиды – малоактивны. Изотоп америция Am-241, обладает периодом полураспада в 432.6 г и достаточно активен (3.5 Кюри/г), в отработанном топливе его содержится значительное количество (например, в ОЯТ ВВР-1000 примерно 0.5 кг/т). В этой работе описан эксперимент по трансмутации (превращению) Am-241 в другие элементы при облучении нейтронами различных энергий. В качестве источника нейтронов использовался синхроциклотрон ПИЯФ, где на установке ГНЕЙС нейтроны образуются в реакции спалейшн [1]. Подробное описание нейтронного спалейшн-источника приведено в [2], а самого синхротрона ПИЯФ в [3].

Эксперимент проводился во время работы стенда GNEISS [2] и использовал внутреннюю мишень ускорителя для генерации потока нейтронов. В предыдущем эксперименте [1] для мониторов нейтронного потока применялась фольга из нержавеющей стали толщиной 10.8 мкм, которая в этом эксперименте служила также и подложкой для нанесения Am-241.

Свойства излучения Am-241 позволяют идентифицировать его с высокой точностью в образце [4, 5]. При облучении Am-241 нейтронами различных энергий возможны следующие ядерные реакции [6, 7]:

- 1)  ${}_{95}^{241}\text{Am} + {}_0^1n \rightarrow {}_{95}^{242}\text{Am} + \gamma$ ;
- 2)  ${}_{95}^{241}\text{Am} + {}_0^1n \rightarrow {}_{95}^{240}\text{Am} + {}_0^1n$ ;
- 3)  ${}_{95}^{241}\text{Am} + {}_0^1n \rightarrow {}_{94}^{241}\text{Pu} + {}_1^1p$ ;
- 4)  ${}_{95}^{241}\text{Am} + {}_0^1n \rightarrow {}_{94}^{240}\text{Pu} + {}_1^2d$ ;
- 5)  ${}_{95}^{241}\text{Am} + {}_0^1n \rightarrow {}_{93}^{238}\text{Np} + {}_2^4\text{He}$ ;
- 6) деление.

В эксперименте искали конечные продукты вышеперечисленных реакций и их дочерних изотопов, см. табл. 1.

### ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА НА СИНХРОТРОНЕ

Использовался набор тех же замедлителей, что и в предыдущем эксперименте: пять 24-литровых канистр, размещенных непосредственно под мишенью (подробнее см. [1]). Схема эксперимента не изменилась (рис. 1), но, видимо, замедлители оказались несколько сдвинутыми относительно свинцовой мишени (см. раздел результаты эксперимента) по сравнению с [1]. Облучение проводилось в течение 100 часов.

После облучения фольги исследовались с помощью гамма-спектрометра с детектором HPGe,

Таблица 1. Пороговые реакции для различных энергий

Реакция	Энергетический порог, МэВ	Сечение, барн	Целевой продукт
$n, \gamma$	0	Более 7000	$^{242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm}$ (83%) $^{242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Pu}$ (17%)
$n, 2n$	6.675	Менее 0.3	$^{240}\text{Am} \rightarrow ^{240}\text{Pu}$
$n, ^4\text{He}$	0	Менее 1	$^{238}\text{Np} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$
$n, ^4\text{He}+n$	0	Данные отсутствуют	$^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{Pa}$
$n, p$	0	Данные отсутствуют	$^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am}$
$n, d$	2.265	Данные отсутствуют	$^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$
$n, f$	0	Более 50	$Z = 40-63$ ( $^{95}\text{Zr} \dots ^{156}\text{Eu}$ )

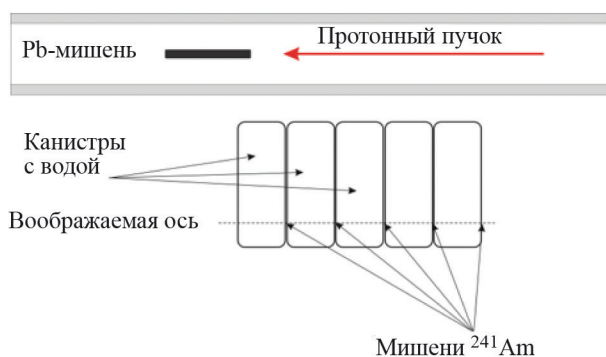


Рис. 1. Схема эксперимента.

с помощью ионизационной альфа-камеры и при помощи электронного микроскопа Сохет ЕМ-30.

### ЭЛЕКТРОННАЯ МИКРОСКОПИЯ– РЕНТГЕНФЛУОРЕСЦЕНТНЫЙ АНАЛИЗ (РФА)

Для анализа состава фольги и поиска ядер деления, которые могут и не быть радиоактивными, а также для контроля равномерности состава поверхности использовалась электронная микроскопия – РФА [8]. Облученные образцы и необлученная фольга были проанализированы при помощи электронного микроскопа Сохет ЕМ-30, который позволяет как получать усредненный по поверхности элементный состав образца, так и картирование элементов по поверхности. Разницы в составе облученных и не облученных образцов не обнаружено, обнаруживаемые элементы по поверхности распределены равномерно, состав образцов, полученный при помощи РФА, приведен в табл. 2.

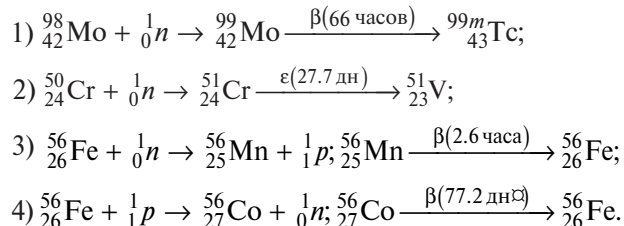
Таблица 2. Состав образцов, полученный методом РФА

Элемент	Доля в весовых процентах	$\sigma$ (среднекв. отклон.)
Fe	64.5	0.3
Cr	19.1	0.2
Ni	9.8	0.2
O	3.5	0.2
Mo	1.7	0.2
Na	0.8	0.1
Si	0.5	0.1

### Определение состава потока нейтронов, проходящего через образцы

Все образцы исследовались на твердотельном гамма-спектрометре, состоящем из детектора HPGe GX1018 (энергетическое разрешение при фотопике 88 кэВ не хуже 0.620 кэВ, при фотопике 1332 кэВ не хуже 1.600 кэВ) и детектора GUL0035 (энергетическое разрешение при фотопике 5.9 кэВ не хуже 130 эВ), а также цифрового анализатора LYNX (Canberra Industries Inc., США). Результаты измерений обрабатывались с помощью программного комплекса Genie-2000 (разработан компанией Canberra Industries, США). Подробнее о калибровке данного комплекса см. [1].

Были обнаружены  $\gamma$ -линии, отнесенные к радиоактивным изотопам:  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Co}$ . Эти изотопы образуются в следующих ядерных реакциях [6, 7]:



В работе [1] по первым двум реакция определялся образец, в котором количество тепловых нейтронов максимально, т.к. реакция имеет 1) существенно меньшее сечение для тепловых нейтронов по сравнению с реакцией; 2) ~15 барн для Cr и ~0.13 барн для цепочки Mo/Tc, см. [1]. Для эпитепловых нейтронов сечения близки, для быстрых нейтронов сечение для Mo/Tc существенно выше, чем для Cr. Таким образом, в этой работе в образце № 1 преобладают тепловые нейтроны, в № 2, 3 – эпитепловые и переходные, в образце № 4 – быстрые. При этом общий поток нейтронов, очевидно, снижается во всех образцах при переходе от образца с большим номером к образцу с меньшим номером, а между вторым и первым образца-

сдвига замедлителя и образцов относительно внутренней свинцовой мишени в спектре появились продукты взаимодействия стальных мониторов с протонами, наличие протонов может усложнить интерпретацию будущих экспериментов. Для количественной оценки энергетического состава потоков нейтронов и вычисления средней «температуры» нейтронного газа в местах расположения образцов необходимо проведение численных расчетов методом Монте–Карло.

### ПЕРСПЕКТИВА ДАЛЬНЕЙШИХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Следующим этапом развития данного эксперимента может стать проведение эксперимента с использованием большого количества америция. Такой эксперимент станет уже весьма дорогостоящим как в силу организационных проблем, так и из-за высокой стоимости образцов. Также необходимо вместо стальных мониторов использовать фольги из чистых металлов (что предлагалось в [1], но не удалось реализовать в этом эксперименте), которые нужно будет проанализировать на нескольких приборах, чтобы зарегистрировать короткоживущие изотопы одновременно на всех образцах, пока активность их высока.

Авторы выражают благодарность коллегам из ПИЯФ: Щербакову О. А., Воробьеву А. С., Гагарскому А. М. и Иванову Е. М. Без них эта работа не могла бы быть выполнена.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

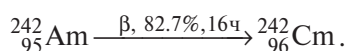
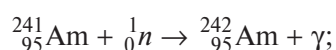
1. *Алексеев И.Е., Белов С.Е., Ершов К.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2022. Т. 86. № 9. С. 1315; *Alekseev I.E., Belov S.E., Ershov K.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2022. V. 86. No. 9. P. 1088.
2. *Shcherbakov O.A., Vorobyev A.S., Ivanov E.M. et al.* // Phys. Part. Nucl. 2018. V. 49. P. 81.
3. *Абросимов Н.К., Воробьев А.А.* // Вестн. АН СССР. 1972. № 11. С. 42.
4. *Алексеев И.Е., Белов С.Е., Ершов К.В. и др.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2022. Т. 86. № 8. С. 1172; *Alekseev I.E., Belov S.E., Ershov K.V. et al.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2022. V. 86. No. 8. P. 971.
5. *Желтоножская М.В., Желтоножский В.А., Мызников Д.Е. и др.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2021. Т. 85. № 10. С. 1172; *Zheltonozhskaya M.V., Zheltonozhsky V.A., Myznikov D.E. et al.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2021. V. 85. No. 10. P. 1122.
6. <https://www.nndc.bnl.gov/nudat3>
7. <https://www-nds.iaea.org/exfor>
8. *Beckhoff B., Kanngießner B., Langhoff N. et al.* Handbook of practical X-ray fluorescence analysis. Berlin, Heidelberg: Springer, 2006.

**Таблица 3.** Распределение в образцах радиоизотопов, полученное методом  $\gamma$ -спектроскопии

Радионуклид	Активность в образце, Бк			
	1	2	3	4
$^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$	40	820	1350	2390
$^{51}\text{Cr}$	1150	1440	2510	500
$^{56}\text{Mn}$	280	–	–	–
$^{56}\text{Co}$	–	370	870	80

ми снижается количество тепловых нейтронов из-за захвата водой (водородом). В отличие от предыдущего эксперимента [1], во всех образцах, кроме первого, обнаружены следы облучения протонами (присутствие Co-56, табл. 3).

Из всех путей трансмутации был обнаружен только один:



Были обнаружены  $\alpha$ -линии кюрия с энергиями: 6069 и 6113 кэВ. Других свидетельств трансмутации обнаружено не было, что не удивительно, т.к. масса америция в мишенях составила 10.3–18.7 нг (соответственно активность мишеней 1356–2535 Бк). Выходы Cm-242 в мишенях (в процентах от активности Am-241: фольга 1–0.0066 %, фольга 2–0.0110 %, фольга 3–0.0159 %, фольга 4 – нет).

### РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Первоначальная цель эксперимента была достигнута, трансмутация Am241 была осуществлена, активности получившегося продукта измерены. Однако из-за малого количества вещества не удалось увидеть другие каналы трансмутации, из-за

## Transmutation of Am-241 at the Petersburg Nuclear Physics Institute synchrotron

I. E. Alekseev<sup>1</sup>, K. V. Ershov<sup>1, 2, \*</sup>

<sup>1</sup>*V.G. Khlopin Radium Institute, Saint-Petersburg, 194021, Russia*

<sup>2</sup>*B.P. Konstantinov Petersburg Nuclear Physics Institute, National Research Centre «Kurchatov Institute», Gatchina, 188300, Russia*

*\* e-mail: ershov\_kv@pnpi.nrcki.ru*

Previously, the authors estimated the neutron flux from the Petersburg Nuclear Physics Institute synchrotron for various moderator configurations near the internal target used to create a neutron flux using the spallation reaction. In this work, an attempt to transmute Am-241 was successful.