

C. N. E. A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1976

07.76.14

CNEA-NT 19/76

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION
DIRECCION DE INVESTIGACION Y DESARROLLO
GERENCIA DE DESARROLLÓ

POSIBILIDADES DE OBTENCION DE Pu-238

por

Héctor C. Rocca. (Dto.Ingeniería Química)

Buenos Aires
Julio 1976

RESUMEN

Se calcularon los valores de producción del Pu-238 y Pu-239 a partir de la irradiación del Np-237 en un reactor de régimen discontinuo. Como paso previo se desarrollaron expresiones que tienen en cuenta los períodos de detención del reactor, como así también la contribución del decaimiento de los nucleidos en la formación de los siguientes.

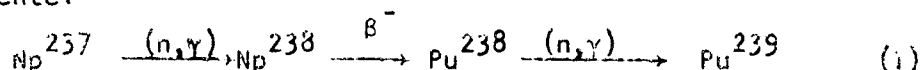
ABSTRACT.

The Pu-238 and Pu-239 production values were calculated from the Np-237 radiation in a reactor with a discontinuous running. Previously expressions that take into account the reactor shutdown periods were developed as well as the nuclides decay contribution in the formation of the following ones.

1 - Introducción

El presente trabajo tiene como objetivo el cálculo de la producción de Pu^{238} a partir de la irradiación de Np^{237} y de la incidencia del Pu^{239} también formado, en la composición isotópica del plutonio obtenido.

La cadena de reacciones sobre la que se basa este informe es la siguiente:



Se estudió la posibilidad de aprovechar esta reacción fundamentalmente por dos razones: la primera de ellas es la conveniente diferencia de precios que existe entre los nucleidos reactivo y producto. La segunda razón, de índole más tecnológica que económica, es la necesidad de crear condiciones de desarrollo y capacitación en el manejo de elementos α -activos de muy alta actividad específica.

2 - Desarrollo

La variación del número de átomos de cada uno de los nucleidos involucrados en (1), en función del tiempo, está dada por:

$$\frac{dN_{38}}{dt} = \sigma_{37}^c \phi N_{37} - \lambda_{38} N_{38} - \sigma_{38}^a \phi N_{38} = \sigma_{37}^c \phi N_{37} - \Lambda_{38} N_{38} \quad (2)$$

donde

$$\Lambda_{38} = \lambda_{38} + \sigma_{38}^a \phi$$

$$\frac{dN_{48}}{dt} = \lambda_{38} N_{38} - \lambda_{48} N_{48} - \sigma_{48}^a \phi N_{48} = \lambda_{38} N_{38} - \Lambda_{48} N_{48} \quad (3)$$

donde

$$\Lambda_{48} = \lambda_{48} + \sigma_{48}^a \phi$$

y finalmente

$$\frac{dN_{49}}{dt} = \sigma_{48}^C \phi N_{48} - \lambda_{49} N_{49} - \sigma_{49}^a \phi N_{49} = \sigma_{48}^C \phi N_{48} - \lambda_{49} N_{49} \quad (4)$$

en este caso $\Lambda_{49} \approx \sigma_{49}^a \phi$

y se introduce Λ como constante generalizada con el solo fin de unificar la nomenclatura utilizada,

En las ecuaciones (2), (3) y (4) se ha utilizado la convención de colocar como primera cifra del subíndice a la última del número atómico del elemento, y como segunda cifra del subíndice a la última del número de masa del nucleído.

Las soluciones a estas ecuaciones diferenciales son las siguientes:

Para la (2) :

$$N_{38} = \frac{\sigma_{37}^C \phi N_{37}^0}{\Lambda_{38} - \Lambda_{37}} (e^{-\Lambda_{37}t} - e^{-\Lambda_{38}t}) + N_{38}^0 e^{-\Lambda_{38}t} \quad (5)$$

Para la (3) :

$$N_{48} = \frac{\lambda_{38} \sigma_{37}^C \phi N_{37}^0}{\Lambda_{38} - \Lambda_{37}} \left[\frac{(e^{-\Lambda_{37}t} - e^{-\Lambda_{48}t})}{\Lambda_{48} - \Lambda_{37}} - \frac{(e^{-\Lambda_{38}t} - e^{-\Lambda_{48}t})}{\Lambda_{48} - \Lambda_{38}} \right] + \\ + \frac{\lambda_{38} N_{38}^0}{\Lambda_{48} - \Lambda_{38}} (e^{-\Lambda_{38}t} - e^{-\Lambda_{48}t}) + N_{48}^0 e^{-\Lambda_{48}t} \quad (6)$$

Por último, para la (4) :

$$N_{49} = \frac{\lambda_{38} \sigma_{37}^C \sigma_{48}^C \phi^2 N_{37}^0}{\Lambda_{38} - \Lambda_{37}} \left[\frac{(e^{-\Lambda_{37}t} - e^{-\Lambda_{49}t})}{(\Lambda_{48} - \Lambda_{37})(\Lambda_{49} - \Lambda_{37})} - \frac{(e^{-\Lambda_{38}t} - e^{-\Lambda_{49}t})}{(\Lambda_{48} - \Lambda_{38})(\Lambda_{49} - \Lambda_{38})} \right] +$$

$$\begin{aligned}
 & + \frac{\lambda_{38} \sigma_{48}^C \phi N_{38}^0}{(\Lambda_{48} - \Lambda_{38})(\Lambda_{49} - \Lambda_{38})} (e^{-\Lambda_{38}t} - e^{-\Lambda_{49}t}) + \frac{\sigma_{48}^C \phi}{\Lambda_{49} - \Lambda_{48}} \left\{ N_{48}^0 - \right. \\
 & - \frac{\lambda_{38} \sigma_{37}^C \phi N_{37}^0}{\Lambda_{38} - \Lambda_{37}} \left[\frac{1}{\Lambda_{48} - \Lambda_{37}} - \frac{1}{\Lambda_{48} - \Lambda_{38}} \right] - \frac{\lambda_{38} N_{38}^0}{\Lambda_{48} - \Lambda_{38}} \left. \right\} (e^{-\Lambda_{48}t} - e^{-\Lambda_{49}t}) + \\
 & + N_{49}^0 e^{-\Lambda_{49}t} \quad (7)
 \end{aligned}$$

Para los cálculos realizados se tuvo en cuenta el esquema actual de funcionamiento del reactor RA-3, que no es de irradiación continua (lo que permitiría un uso directo de las ecuaciones (5), (6) y (7) sino que intercala periodos de detención entre los de marcha.

Esta particularidad obliga a modificar las funciones de producción de los nucleidos de interés, encarándolas como irradiaciones sucesivas de un mismo blanco, ya que el periodo de semidesintegración del Np^{238} (50,8 h) es suficientemente corto como para tener influencia en los valores de producción.

De acuerdo con lo anterior, las modificaciones que es necesario introducir son:

a) En la ecuación (5) el primer término en el segundo ciclo será igual en valor al del primero multiplicado por $e^{-\Lambda_{37}t}$ para tener en cuenta la disminución del número de átomos blancos. Al mismo tiempo N_{38}^0 para el segundo ciclo será igual al valor de N_{38} en el primero, pero disminuido en un factor $e^{-\lambda_{38}T}$ donde T es el tiempo de decaimiento.

Para el segundo ciclo quedará, en consecuencia:

$$N_{38} = A (e^{-\Lambda_{37}t} - e^{-\Lambda_{38}t}) (e^{-\Lambda_{37}t} + e^{-\lambda_{38}T} e^{-\Lambda_{38}t}) \quad (8)$$

$$\text{donde } A = \frac{\sigma_{37}^C \phi N_{37}^0}{\Lambda_{38} - \Lambda_{37}}$$

Se puede deducir simplemente que para el ciclo n , el valor de (5) estará dado por:

$$N_{38} = A(e^{-\Lambda_{37}t} - e^{-\Lambda_{38}t})(e^{-(n-1)\Lambda_{37}T} + e^{-(n-2)\Lambda_{37}T}e^{-\lambda_{38}T}e^{-\Lambda_{38}t} + \dots + e^{-\Lambda_{37}t}e^{-(n-2)\lambda_{38}T}e^{-(n-2)\Lambda_{38}t} + e^{-(n-1)\lambda_{38}T}e^{-(n-1)\Lambda_{38}t}) \quad (9)$$

lo que puede expresarse como

$$N_{38} = A(e^{-\Lambda_{37}t} - e^{-\Lambda_{38}t}) \sum_{m=0}^{n-1} e^{-m\Lambda_{37}T} e^{-s\lambda_{38}T} e^{-s\Lambda_{38}t} \quad (10)$$

siendo $s = n-1-m$

b) En la ecuación (6) el primer término en el segundo ciclo será igual en valor al del primero disminuido nuevamente en $e^{-\Lambda_{37}T}$; N_{38}^o valdrá en este caso lo que N_{38} en el primer ciclo, multiplicado por $e^{-\lambda_{38}T}$; finalmente el valor de N_{48}^o sale de considerar el aporte que sobre el valor de N_{48} del primer ciclo (disminuido en $e^{-\lambda_{48}T}$) realiza el decaimiento del Np^{238} durante el tiempo T .

Esta contribución está dada por:

$$N_{48}^o = \frac{\lambda_{38}}{\lambda_{48} - \lambda_{38}} N_{38} (e^{-\lambda_{38}T} - e^{-\lambda_{48}T}) \quad (11)$$

de forma que la expresión total de N_{48} para el segundo ciclo será

$$N_{48} = B e^{-\Lambda_{37}t} + N_{38} \left[\frac{\lambda_{38}}{\lambda_{48} - \lambda_{38}} (e^{-\Lambda_{38}t} - e^{-\Lambda_{48}t}) e^{-\lambda_{38}T} + \frac{\lambda_{38}}{\lambda_{48} - \lambda_{38}} (e^{-\lambda_{38}T} - e^{-\lambda_{48}T}) e^{-\Lambda_{48}t} \right] + B e^{-\lambda_{48}T} - e^{-\Lambda_{48}t} \quad (12)$$

$$\text{donde } B = \lambda_{38} A \left[\frac{(e^{-\Lambda_{37}t} - e^{-\Lambda_{48}t})}{\Lambda_{48} - \Lambda_{37}} - \frac{(e^{-\Lambda_{38}t} - e^{-\Lambda_{48}t})}{\Lambda_{48} - \Lambda_{38}} \right]$$

Se dedujo la expresión que adopta la ecuación (6) para el ciclo n, siendo el resultado :

$$\begin{aligned} N = B & \left[e^{-(n-1)\Lambda_{37}t} + e^{-(n-2)\Lambda_{37}t} e^{-\Lambda_{48}t} e^{-\lambda_{48}T} + \dots + \right. \\ & + e^{-\Lambda_{37}t} e^{-(n-2)\Lambda_{48}t} e^{-(n-2)\lambda_{48}T} + e^{-(n-1)\Lambda_{48}t} e^{-(n-1)\lambda_{48}T} \Big] + \\ & + C \left[e^{-(n-1)\lambda_{38}T} e^{-(n-2)\Lambda_{38}t} + e^{-(n-2)\lambda_{38}T} e^{-(n-3)\Lambda_{38}t} (e^{-\Lambda_{37}t} + \right. \\ & + e^{-\Lambda_{48}t} e^{-\lambda_{48}T}) + e^{-(n-3)\lambda_{38}T} e^{-(n-4)\Lambda_{38}t} (e^{-2\Lambda_{37}t} + \\ & + e^{-\Lambda_{37}t} e^{-\Lambda_{48}t} e^{-\lambda_{48}T} + e^{-2\Lambda_{48}t} e^{-2\lambda_{48}T}) + \dots + \\ & + e^{-\lambda_{38}T} (e^{-(n-2)\Lambda_{37}t} + e^{-(n-3)\Lambda_{37}t} e^{-\Lambda_{48}t} e^{-\lambda_{48}T} + \dots + \\ & + e^{-\Lambda_{37}t} e^{-(n-3)\Lambda_{48}t} e^{-(n-3)\lambda_{48}T} + e^{-(n-2)\Lambda_{48}t} e^{-(n-2)\lambda_{48}T}) \Big] + \\ & + D \left[e^{-(n-1)\Lambda_{48}t} e^{-(n-2)\lambda_{48}T} + e^{-(n-2)\Lambda_{48}t} e^{-(n-3)\lambda_{48}T} (e^{-\Lambda_{37}t} + \right. \\ & + e^{-\Lambda_{38}t} e^{-\lambda_{38}T}) + e^{-(n-3)\Lambda_{48}t} e^{-(n-4)\lambda_{48}T} (e^{-2\Lambda_{37}t} + \\ & + e^{-\Lambda_{37}t} e^{-\Lambda_{38}t} e^{-\lambda_{38}T} + e^{-2\Lambda_{38}t} e^{-2\lambda_{38}T}) + \dots + \\ & + e^{-\Lambda_{48}t} (e^{-(n-2)\Lambda_{37}t} + e^{-(n-3)\Lambda_{37}t} e^{-\Lambda_{38}t} e^{-\lambda_{38}T} + \dots + \\ & + e^{-\Lambda_{37}t} e^{-(n-3)\Lambda_{38}t} e^{-(n-3)\lambda_{38}T} + e^{-(n-2)\Lambda_{38}t} e^{-(n-2)\lambda_{38}T}) \Big] \end{aligned} \quad (13')$$

en este caso

$$C = \frac{\lambda_{38}}{\Lambda_{48} - \Lambda_{38}} (e^{-\Lambda_{38}t} - e^{-\Lambda_{48}t}) A (e^{-\Lambda_{37}t} - e^{-\Lambda_{38}t}) \quad y$$

$$D = \frac{\lambda_{38}}{\lambda_{48} - \lambda_{38}} (e^{-\lambda_{38}T} - e^{-\lambda_{48}T}) A (e^{-\lambda_{37}t} - e^{-\lambda_{38}t})$$

La ecuación (13) puede ser generalizada en

$$\begin{aligned} N_{48} = & B \sum_{m=0}^{n=1} e^{-m\lambda_{37}t} - e^{-s\lambda_{48}t} e^{-s\lambda_{48}T} + \\ & + C \sum_{m=1}^{n-1} (e^{-m\lambda_{38}T} e^{-(m-1)\lambda_{38}t} \sum_{p=0}^s e^{-p\lambda_{37}t} e^{-(s-p)\lambda_{48}t} e^{-(s-p)\lambda_{48}T}) + \\ & + D \sum_{m=1}^{n-1} (e^{-m\lambda_{48}t} e^{-(m-1)\lambda_{48}T} \sum_{p=0}^s e^{-p\lambda_{37}t} e^{-(s-p)\lambda_{38}t} e^{-(s-p)\lambda_{38}T}) \end{aligned} \quad (14)$$

c) Finalmente, en el caso de la ecuación (7) en el segundo ciclo el primer término valdrá lo que en el primero pero multiplicado por $e^{-\lambda_{37}t}$; nuevamente N_{38}^2 tendrá el valor de N_{38} en el primer ciclo multiplicado por $e^{-\lambda_{38}T}$; se debe agregar además la contribución correspondiente al decaimiento del N_p^{238} durante el período de detención, Similarmente a lo acontecido con N_{38}^2 , N_{48}^2 valdrá lo que en el primer ciclo disminuido en $e^{-\lambda_{48}T}$; mientras que N_{49}^2 será el mismo valor del ciclo anterior.

Queda entonces para N_{49} en el segundo ciclo:

$$N_{49} = E e^{-\lambda_{37}t} + F e^{-\lambda_{38}T} + I + G e^{-\lambda_{48}T} + E e^{-\lambda_{49}t} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \text{donde} \\ E = & \lambda_{38} \sigma_{48}^C \phi A \left[\frac{(e^{-\lambda_{37}t} - e^{-\lambda_{49}t})}{(\lambda_{48} - \lambda_{37})(\lambda_{49} - \lambda_{37})} - \frac{(e^{-\lambda_{38}t} - e^{-\lambda_{49}t})}{(\lambda_{48} - \lambda_{38})(\lambda_{49} - \lambda_{38})} \right] - \\ & - \frac{\sigma_{48}^C \phi \lambda_{38} A}{\lambda_{49} - \lambda_{48}} \left[\frac{1}{\lambda_{48} - \lambda_{37}} - \frac{1}{\lambda_{48} - \lambda_{38}} \right] (e^{-\lambda_{48}t} - e^{-\lambda_{49}t}) \\ F = & \left[\frac{\lambda_{38} \sigma_{48} \phi (e^{-\lambda_{38}t} - e^{-\lambda_{49}t})}{(\lambda_{48} - \lambda_{38})(\lambda_{49} - \lambda_{38})} - \right. \\ & \left. - \frac{\sigma_{48}^C \phi \lambda_{38} (e^{-\lambda_{48}t} - e^{-\lambda_{49}t})}{(\lambda_{49} - \lambda_{48})(\lambda_{48} - \lambda_{38})} \right] A (e^{-\lambda_{37}t} - e^{-\lambda_{38}t}) \end{aligned}$$

$$G = \frac{\sigma_{48}^C \phi (e^{-\Lambda_{48}t} - e^{-\Lambda_{49}t})}{\Lambda_{49} - \Lambda_{48}} B ; H = \frac{G C}{B} ; I = \frac{G D}{B}$$

La generalización de la ecuación (7) para el ciclo n es la siguiente:

$$\begin{aligned} N_{49} = & E \sum_{m=0}^{n-1} e^{-m\Lambda_{37}t} - e^{-s\Lambda_{49}t} + \\ & + F \sum_{m=1}^{n-1} (e^{-m\lambda_{38}T} e^{-(m-1)\Lambda_{38}t} \sum_{p=0}^s e^{-p\Lambda_{37}t} e^{-(s-p)\Lambda_{49}t}) + \\ & + G \sum_{m=1}^{n-1} (e^{-m\lambda_{48}T} e^{-(m-1)\Lambda_{48}t} \sum_{p=0}^s e^{-p\Lambda_{37}t} e^{-(s-p)\Lambda_{49}t}) + \\ & + H \sum_{m=1}^{n-2} \left[e^{-m\lambda_{38}T} e^{-(m-1)\Lambda_{38}t} \sum_{p=1}^s (e^{-p\lambda_{48}T} e^{-(p-1)\Lambda_{48}t} \sum_{q=0}^{s-p} e^{-q\Lambda_{37}t} e^{-(s-p-q)\Lambda_{49}t}) \right] + \\ & + I \sum_{m=1}^{n-2} \left[e^{-m\lambda_{38}T} e^{-m\Lambda_{38}t} \sum_{p=1}^s (e^{-(p-1)\Lambda_{37}t} \sum_{q=0}^{s-p} e^{-q\Lambda_{48}t} e^{-q\lambda_{48}T} e^{-(s-p-q)\Lambda_{49}t}) \right] + \\ & + I \sum_{m=0}^{n-2} (e^{-m\Lambda_{37}t} \sum_{p=0}^{s-1} e^{-p\Lambda_{48}t} e^{-p\lambda_{48}T} e^{-(s-1-p)\Lambda_{49}t}) \end{aligned} \quad (16)$$

Las ecuaciones (10), (14) y (16) pueden ser programadas sin inconvenientes a fin de obtener los valores de interés. Si se desean los resultados de los tres nucleídos, las dos últimas funciones se ven simplificadas por la introducción de N_{38} y N_{48} como valores ya calculados.

3 - Cálculo

Se utilizaron los siguientes parámetros correspondientes a la actual configuración del reactor RA-3 y a su esquema de funcionamiento en vigencia.

$$\phi_{th} = 2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ seg}$$

$$\phi_w = \phi_{th} \sqrt{\frac{\pi T_o}{4 T_n}} (1 + b) = 1,66 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ seg}$$

$$T_n = 340^\circ \text{ K} ; \quad \lambda = 0,0105 ; \quad b = 1,128$$

$$\bar{\sigma} = \sigma_o (g + rs) ; \quad r = \frac{\lambda}{1 + \lambda b} = 0,01$$

g y s son funciones de T_n y se encuentran tabuladas por Westcott para algunos nucleidos

$$t = 10 \text{ días} ; \quad T = 4 \text{ días}$$

No se tuvo en cuenta la contribución a algunas reacciones por el flujo rápido.

Los valores correspondientes a los nucleidos intervinientes que se utilizaron fueron:

$$T_{98}^{1/2} = 50,8 \text{ h} ; \quad T_{48}^{1/2} = 87,75 \text{ a}$$

$$\Lambda_{37} = 3,0212 \times 10^{-9} \text{ seg}^{-1} \quad \Lambda_{38} = 3,8307701 \times 10^{-6} \text{ seg}^{-1}$$

$$\Lambda_{48} = 1,1520255 \times 10^{-8} \text{ seg}^{-1} \quad \Lambda_{49} = 1,95216 \times 10^{-8} \text{ seg}^{-1}$$

4 - Resultados

Los resultados obtenidos aparecen en la tabla I, dándose el número de átomos de los nucleidos de interés en función del número de ciclos de irradiación, entendiéndose por ciclo a la suma de los tiempos de irradiación y de espera. Los valores son dados a fin de irradiación del ciclo correspondiente, para un gramo de Np^{237} .

En el gráfico 1 se han volcado los datos de la tabla I, no teniendo significado real la unión de los puntos más que para permitir una correcta visualización de los mismos.

TABLA I

Ciclo	N ₃₈	N ₄₈	N ₄₉
1	1,9264 x 10 ¹⁸	4,6260 x 10 ¹⁸	1,7499 x 10 ¹⁶
2	1,9404 "	1,1078 x 10 ¹⁹	9,4326 x 10 ¹⁶
3	1,9355 "	1,7467 "	2,3011 x 10 ¹⁷
4	1,9305 "	2,3776 "	4,2312 "
5	1,9254 "	3,0005 "	6,7165 "
6	1,9204 "	3,6154 "	9,7402 "
7	1,9154 "	4,2226 "	1,3286 x 10 ¹⁸
8	1,9104 "	4,8220 "	1,7338 "
9	1,9054 "	5,4137 "	2,1880 "
10	1,9005 "	5,9979 "	2,6897 "
11	1,8955 "	6,5746 "	3,2374 "
12	1,8906 "	7,1438 "	3,8296 "
13	1,8856 "	7,7057 "	4,4649 "
14	1,8807 "	8,2603 "	5,1419 "
15	1,8758 "	8,8078 "	5,8593 "
16	1,8709 "	9,3481 "	6,6156 "
17	1,8660 "	9,8814 "	7,4095 "
18	1,8612 "	1,0408 x 10 ²⁰	8,2398 "
19	1,8563 "	1,0927 "	9,1053 "
20	1,8515 "	1,1440 "	1,0005 x 10 ¹⁹

5 - Conclusiones

De los valores obtenidos puede deducirse la factibilidad de una producción de Pu²³⁸ a partir de Np²³⁷ con conocimiento del rendimiento alcanzado y el grado de contaminación con Pu²³⁹, en función del número de ciclos de irradiación.

De las ecuaciones desarrolladas pueden obtenerse asimismo, estos mismos valores para un determinado ciclo de irradiación o para distintos tiempos de irradiación y de detección.

Figura 1

