

03.74.09

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1974

CNEA/Pr. 5/160

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

PRODUCCION DE ^{237}Np EN EL REACTOR RA-3

por

J.G. Fleggenheimer* y A.J.G. Maroto**

* Area Reactores Nucleares
** Prospectiva

BUENOS AIRES
NOVIEMBRE 1974

RESUMEN

Se analizó la producción de neptunio-237 en el reactor RA-3, en función de diversos valores de la sección eficaz de captura del uranio-236 y a diferentes niveles de quemado.

ABSTRACT

The production of neptunium-237 in RA-3 reactor is described as a function of the effective cross-section of uranium-236 and the burn-up of the fuel elements.

La irradiación de neptunio-237 puro en reactores produce plutonio-238 y, en pequeña proporción, 239 y 236. Este último nucleído, con un período de 2,85 años, desintegra a uranio-232 y sus hijas, algunas de las cuales poseen radiación gamma dura. Es por este motivo que las especificaciones para la concentración de plutonio-236 en plutonio-238 son estrictas y varían de acuerdo al uso que se le da al producto.

Así, por ejemplo, cuando el plutonio-238 se utiliza para fines médicos (marcapasos) es especialmente importante que el cociente $^{236}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ sea bajo, para que la dosis de radiación que reciba el paciente sea la más pequeña posible (la concentración de plutonio-236 en este caso no debe ser mayor que 0,3 ppm).

El plutonio-238, debido a sus características radioactivas, con una vida media relativamente grande (87,4 años), alta actividad específica y bajos requerimientos de blindaje, hace que sea una fuente potencial de energía utilizable para numerosos fines. En la bibliografía existen trabajos donde se mencionan sus posibles aplicaciones (2,3,4) y se describen algunas de ellas en detalle (5).

Los procesos para la recuperación y purificación del neptunio han sido exhaustivamente estudiados (6,7,8,9), como así también los métodos que se emplean para la separación de plutonio-238 del neptunio-237 irradiado. En Savannah River y Hanford (EE.UU) (10,11,12) y en Inglaterra (13) utilizan intercambio aniónico, mientras que los franceses emplean procesos de extracción por solventes con TLA (14,15).

El neptunio-237 es usualmente irradiado como dióxido encapsulado en recipientes adecuados. Los métodos para la fabricación de los "target" en Savannah River han sido descritos por Porter (16) y Groh (17).

Alta concentración de plutonio-238 puede obtenerse seleccionando apropiadamente las condiciones de irradiación (18,19).

PRODUCCION DE NEPTUNIO-237

Si se considera que los nucleidos desaparecen o se forman por procesos de captura de neutrones y no por desintegración y si además se desprecia la formación intermedia del uranio-237 ($T_{27} = 6,75$ d) y la fisión del neptunio-237, obtenemos que la formación de este último durante el quemado en un reactor de alto enriquecimiento, según la cadena (1), resulta expresado por:

$$\begin{aligned}
 N_{37}/N_{25}^0 &= \frac{\sigma_{26} \cdot \sigma_{25}}{(\sigma_{37} - \sigma_T)(\sigma_{26} - \sigma_T)} (e^{-\sigma_T E} - e^{-\sigma_{37} E}) + \\
 &+ \frac{\sigma_{26}}{(\sigma_{37} - \sigma_{26})} \left[R_{6/5}^0 - \sigma_{25} / (\sigma_{26} - \sigma_T) \right] \cdot \\
 &\cdot (e^{-\sigma_{26} E} - e^{-\sigma_{37} E}) \quad (2)
 \end{aligned}$$

Donde: N_{ab} es el número de átomos del nucleido, siendo a la última cifra del número atómico y b la última cifra del número de masa (20); $R_{6/5}^0$ es la relación entre el uranio 236 y 235 antes de la operación del reactor y E es el flujo integrado.

Las secciones eficaces que aparecen en la expresión (2) se conocen relativamente bien ($\sigma_{25} = 107$ b, $\sigma_{37} = 170$ b, $\sigma_T = 687$ b) excepto la σ_{26} . Esta última es la que determina principalmente la producción del neptunio en el reactor RA-3.

En la Fig. 1, se ha representado la formación del neptunio-237 en función del flujo integrado para diferentes valores de σ_{26} para un dado valor de $R^{\circ}6/5 = 0,00323$.

De esta figura se desprende la necesidad de conocer el valor de la sección eficaz de captura del uranio-236 para tomar una decisión sobre la separación del neptunio durante el reprocesamiento del combustible quemado del reactor RA-3.

En las Figs. 2,3,4,5 y 6 se ha representado la producción del neptunio en función de la sección eficaz σ_{26} , para distintos enriquecimientos de uranio-236 y diferentes quemados (x).

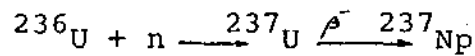
Para calcular el enriquecimiento en uranio-236 con el quemado del combustible pueden utilizarse las Figs. 2 y 10 de un trabajo anterior ⁽¹⁾.

Conclusiones

De este trabajo surge la necesidad de conocer la sección eficaz de captura de neutrones en uranio-236 sobre la cual se encuentran datos dispares en la literatura.

Se sugiere que se emplee el siguiente método:

a.- Irradiaciones muy cortas sobre muestras de uranio de conocida composición isotópica, conteniendo uranio-236. Para este caso la doble captura en uranio-235 puede despreciarse completamente respecto a la captura directa en el uranio-237, que desintegra con un período de 6,75 días por radiación β^- , con E_{\max} de 0,2 Mev y rayos gamma de energía conocida permitirá determinar σ_{26} .



La actividad producida se rige por:

$$A_{27} = N_{26} \cdot \phi \cdot \sigma_{26} \cdot (1 - e^{-\lambda_{27}t})$$

que para irradiaciones cortas respecto al período se reduce a:

$$A_{27} = N_{26} \cdot \phi \cdot \sigma_{26} \cdot \lambda_{27} \cdot t$$

La determinación del flujo puede hacerse mediante un patrón de sección conocida por ejemplo ${}^{197}_{79}\text{Au}$, con lo cual para la misma limitación anterior resulta:

$$A_{98} = N_{97} \cdot \varphi \cdot \sigma_{97} \cdot \lambda_{98} \cdot t$$

De la relación de las dos actividades se obtienen

$$\sigma_{26} = \sigma_{97} \cdot \frac{A_{27}}{A_{98}} \cdot \frac{N_{97}}{N_{26}} \cdot \frac{T_{27}}{T_{98}}$$

Donde T_{ab} son los períodos de semidesintegración respectivos y σ_{97} es la sección efectiva de captura para el oro en esa posición en el reactor. Las N_{ab} se pueden determinar, por ejemplo por medio de una titulación química para el uranio, convirtiendo a uranio-236 por medio del conocimiento de la composición isotópica y para las A_{ab} , que representa las actividades absolutas, se puede emplear contadores 4π .

TABLA I

Composición isotópica original del uranio utilizado para una parte de la primera carga del reactor RA-3.

^{234}U	0,84 %
^{235}U	89,91 %
^{236}U	0,29 %
^{238}U	8,96 %

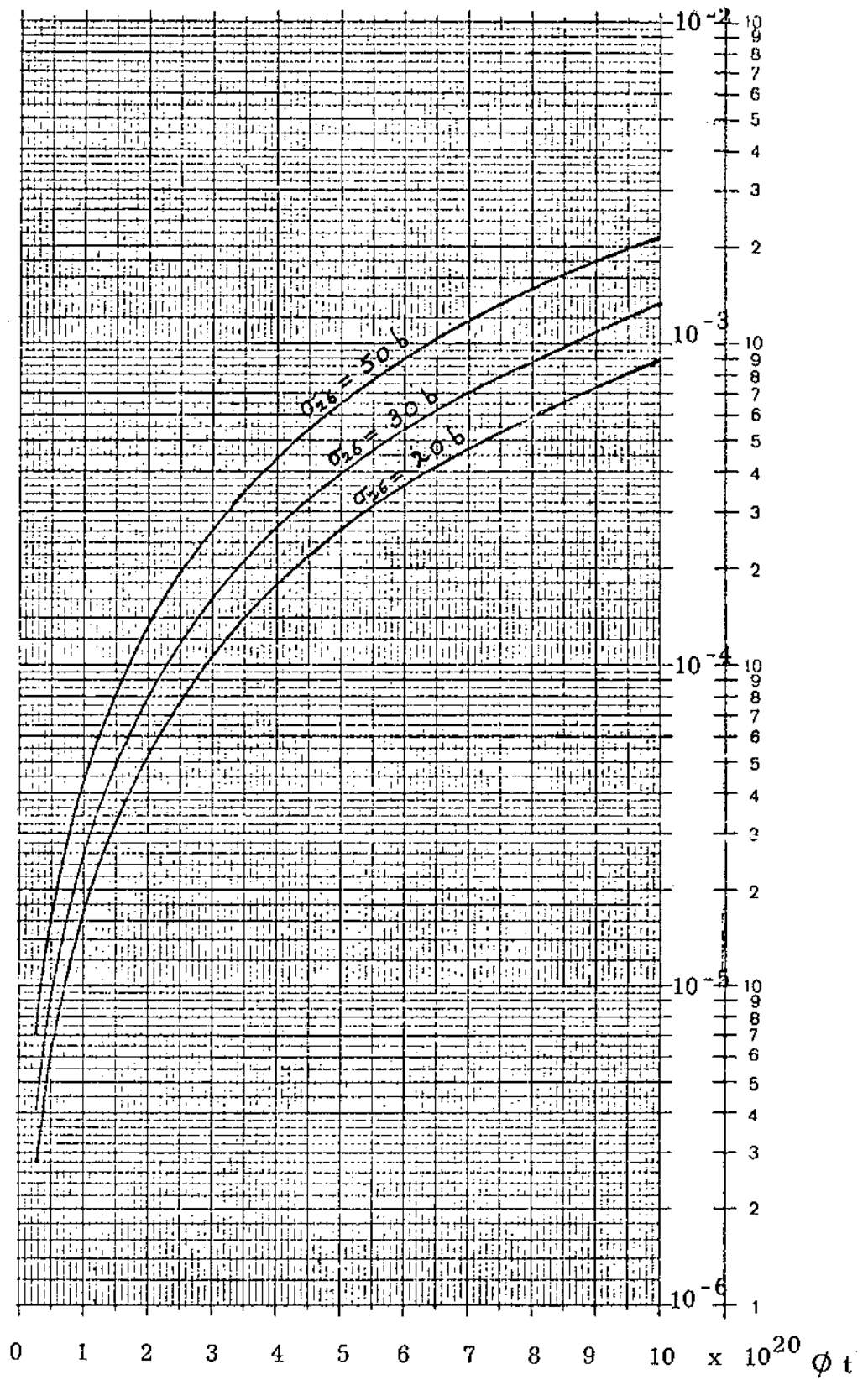


Fig. 1 Formación del ^{237}Np en función del flujo integrado.

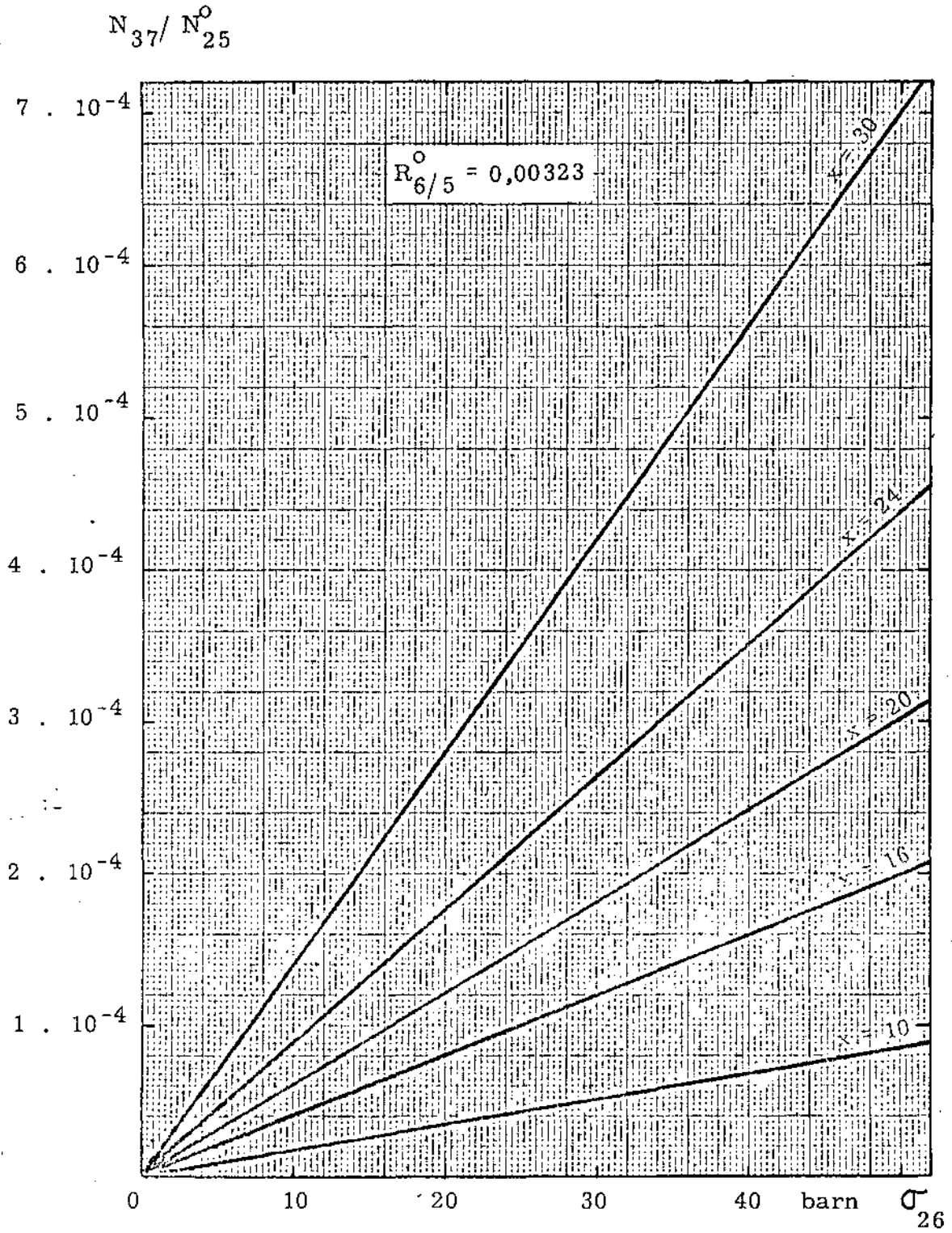


Fig. 2 (Ver en el texto)

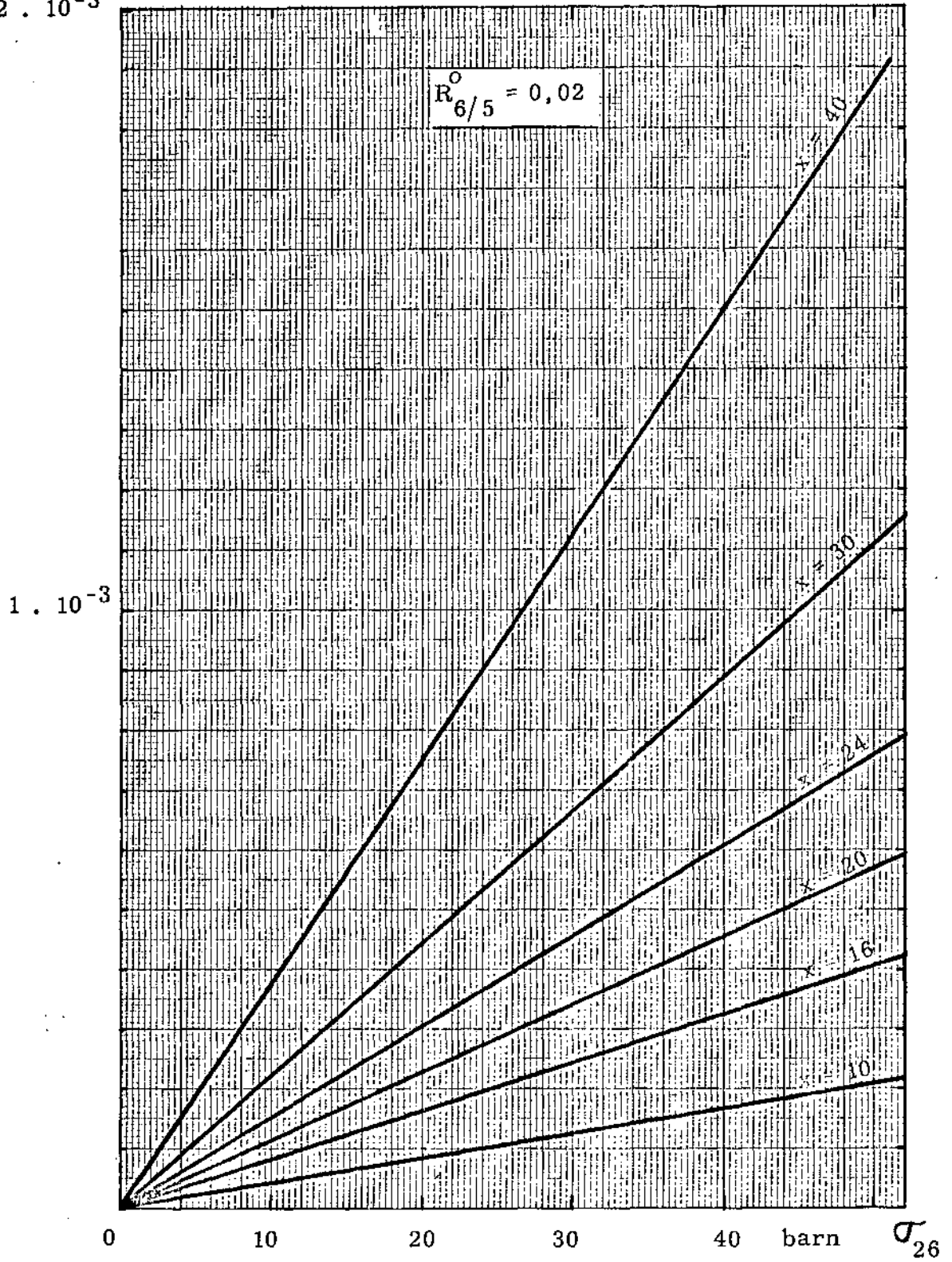
$2 \cdot 10^{-3}$ 

Fig. 3 (Ver en el texto)