



Agenzia nazionale per le nuove tecnologie, l'energia
e lo sviluppo economico sostenibile



Ministero dello Sviluppo Economico

RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Aspetti critici della gestione degli Attinidi Minori attraverso irraggiamento neutronico

A. Cesana , G. Glinatsis , G.L. Raselli

ASPETTI CRITICI DELLA GESTIONE DEGLI ATTINIDI MINORI ATTRAVERSO IRRAGGIAMENTO NEUTRONICO

G. Glinatsis ENEA

A. Cesana Politecnico Milano & Gruppo Il INFN Sez. Milano

G.L. Raselli INFN Sez. Pavia

Settembre 2012

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico - ENEA

Area: Governo, Gestione e Sviluppo, del Sistema Elettrico Nazionale

Progetto: Nuovo Nucleare da Fissione: Collaborazioni Internazionali e sviluppo Competenze in Materia Nucleare

Responsabile del Progetto: Massimo Sepielli, ENEA

Titolo

Aspetti critici della gestione degli Attinidi Minori attraverso irraggiamento neutronico

Descrittori

Tipologia del documento: **Rapporto Tecnico**

Collocazione contrattuale: ACCORDO DI PROGRAMMA Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA sulla Ricerca di Sistema Elettrico PIANO ANNUALE DI REALIZZAZIONE 2011 Progetto 1.3.1: Energia nucleare: NUOVO NUCLEARE DA FISSIONE: COLLABORAZIONI INTERNAZIONALI E SVILUPPO COMPETENZE IN MATERIA NUCLEARE, PAR 2011.

Argomenti trattati: Esperienze Nucleari, Misure Nucleari, Reazioni Nucleari, Dati Nucleari

Sommario

Una delle principali preoccupazioni della pubblica opinione, per l'utilizzo del nucleare per la produzione di energia elettrica, è la gestione dei rifiuti nucleari altamente radioattivi. Vari scenari del ciclo del combustibile nucleare, volti a ridurre la quantità di questi rifiuti sono stati analizzati e molti altri sono oggetto di studio.

Risultato comune di questi studi è la rinnovata attenzione sulle incertezze dei dati nucleari, motivata dalla necessità pratica di garantire che i sistemi nucleari siano sicuri, affidabili e economicamente convenienti. In particolare i dati nucleari relativi agli Attinidi Minori non sono sufficientemente noti per soddisfare le elevate esigenze in termini di accuratezza e sicurezza. La comunità scientifica è significativamente impegnata allo scopo di migliorare i diversi aspetti della "conoscenza fisica" dei processi di trasmutazione, non ultima la questione della fattibilità delle misure sperimentali atte a produrre risultati significativamente utili alla conoscenza fisica.

Questo studio è dedicato all'analisi di uno degli aspetti più critici, ovvero la precisione delle misure sperimentali delle sezioni d'urto di (alcuni) Attinidi Minori.

Note

Autori: A. Cesana¹, G. Glinatsis², G.L. Raselli³

¹ Politecnico Milano & Gruppo II INFN Sez. Milano ;

² ENEA- UTFISSM/PRONOC, Bologna;

³ INFN Sez. Pavia;



Copia n.

In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMMISSIONE	03/9/2012	NOME	G. Glinatsis	F. Padoani	M. Sepielli
			FIRMA	<i>G. Glinatsis</i>	<i>F. Padoani</i>	<i>M. Sepielli</i>
REV.	DESCRIZIONE	DATA	REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE	

Indice

1. Considerazioni Generali.....pag. 03
2. Condizioni al Contornopag. 03
3. Contesto Internazionale.....pag. 04
4. L'Esperimento per la Produzione dell' ^{242m}Am pag. 06
5. Considerazioni finali.....pag. 07

Bibliografiapag. 08

Appendice: *Ri-visitazione critica e ri-progettazione dell'esperienza di irraggiamento di neutronico di campioni ^{241}Am , indirizzate verso spettri veloci*pag. 09

1. Considerazioni Generali

Un ciclo del combustibile nucleare affidabile ed economicamente vantaggioso, con gestione sicura dei waste ad alto livello di radioattività (HLW), è “obbligatorio” per conseguire uno sviluppo sostenibile dell'energia nucleare sia nell’Iniziativa Generation-IV,[1], sia in quella dell’UE Sustainable Nuclear Energy–Technology Platform,[2]. Se la minimizzazione dei waste e la riduzione del carico termico sono perseguibili, gli Attinidi Minori (AM) - principalmente Nettunio (Np), Americio (Am) e Curio (Cm) – dovranno essere gestiti in modo appropriato. Il modo più efficace per gestire gli AM è la loro trasmutazione nei reattori nucleari: da i termici ai veloci sia critici sia sotto-critici. Naturalmente la trasmutazione degli AM non è facile. Dal punto di vista di progetto neutronico del nocciolo del reattore, il caricamento degli AM generalmente condiziona i parametri fisici, quali: perdita di reattività per irraggiamento, coefficienti di reattività di densità, parametri di sicurezza (ad es. frazione di neutroni ritardati, coeff. Doppler, effetto vuoto del defrigerante), distribuzione di potenza, calore di decadimento(DHRS Reliability), ecc.

Poiché per una "significativa" riduzione dei waste il concetto del riciclo del combustibile è essenziale, l'opzione più promettente per qualsiasi concetto di riciclo del combustibile è quella che prevede l'utilizzo dei reattori veloci. La scelta tra sistema veloce sotto-critico e sistema veloce critico sarà il risultato di scelte-vincoli in materia di problemi tecnologici sia per i reattori sia per il ciclo del combustibile associato, con condizionamenti importanti dovuti al costo finanziario e ai tempi di maturazione dei processi a livello di applicazione industriale.

I razionali per la scelta di: tipo di riciclo dei transuranici (TRU), tipo di reattore, tipo di combustibile, gestione degli AM, ecc, sono stati analizzati in diversi studi, [3]. Naturalmente, l'evoluzione temporale degli isotopi dipende dallo spettro neutronico del reattore che caratterizza le sezioni d’urto. Pertanto, il comportamento esponenziale delle concentrazioni isotopiche degli AM in funzione della loro concentrazione di equilibrio:

$$C(t) = C_{eq} [1 - e^{-f(\sigma, \Phi, \lambda, \dots)t}] \quad (1)$$

dipende non soltanto dalla quantità degli AM caricati nel nocciolo del reattore, ma anche dalle sezioni d’urto e lo spettro neutronico del reattore stesso, con una costante di tempo proporzionale al flusso neutronico nel nocciolo del reattore. Giova sottolineare che in un reattore critico il carico massimo degli AM caricati nel nocciolo dipende dal comportamento dinamico del sistema; al contrario in una reattore sotto-critico non esiste tale limitazione.

2. Condizioni al Contorno

Studi di scenario energetico, a livello regionale europeo, che prevede la progressiva sostituzione degli attuali LWR di Generazione-II entro il 2025 con LWR di Generazione III e III-Plus a partire dal 2020, con progressiva introduzione e compresenza (fino al 2100) di reattori veloci di Generazione-IV a partire dal 2040, [4], evidenziano l’importanza della trasmutazione degli AM, Fig.1, sia in termini di massa e di carico radiologico sia in termini di calore di decadimento e di impatto al deposito geologico. Nello stesso tempo, il singolo contributo dei principali AM evidenzia:

- il “peso” dell’Am rispetto Np e Cm,
- l’importanza della costante di tempo del Cm, di gran lunga superiore rispetto alla lunghezza del ciclo di irraggiamento del combustibile.

Alla fine della durata dello scenario energetico considerato , ovvero al 2200, la ripartizione percentuale Np: Am: Cm senza riprocessamento e riciclo degli AM è 27.43: 71.33: 1.23

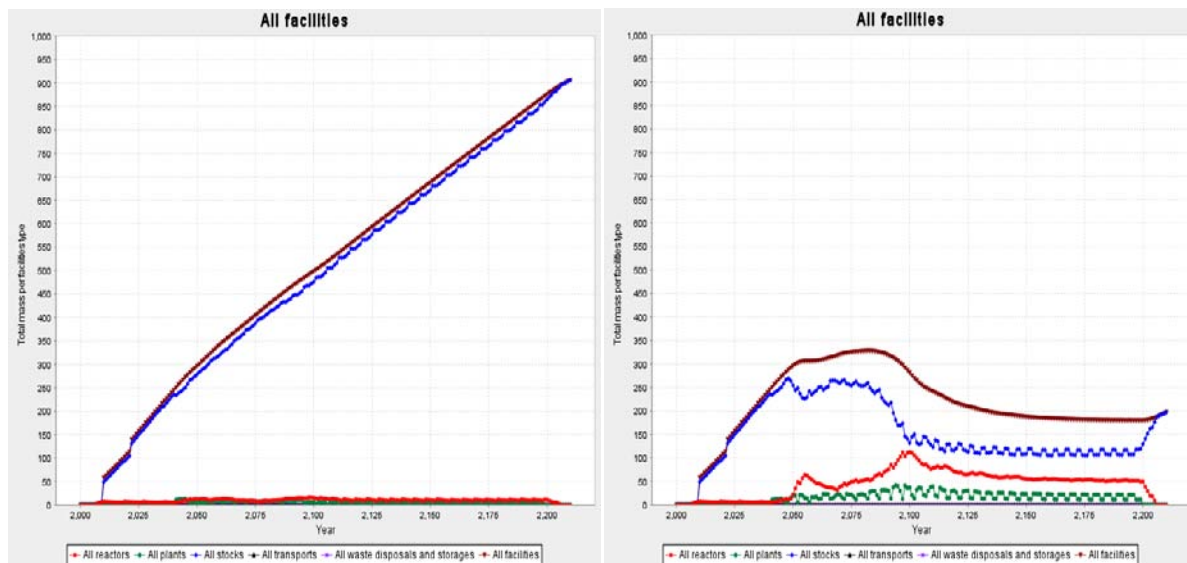


Fig. 1

MA inventory without and with MA reprocessing. Scenario studies (LWR+1/3 SFR).

che diventa rispettivamente pari a : 16.00: 69.33: 14.67 nel caso di riprocessamento e riciclo (in omogeneo) degli AM.

La diversità del comportamento degli AM impone alcune riflessioni circa le motivazioni per la trasmutazione degli AM e alcune conseguenze di una tale scelta.

La trasmutazione degli AM permette una riduzione:

- del potenziale di radiotossicità,
- delle masse e inventario dei Long Lived Waste (LLW),
- del carico termico dei contenitori dei waste,
- dimensione e costo del deposito geologico.

In particolare, sebbene la trasmutazione del Am dia luogo alla produzione di Cm, sono attesi i seguenti vantaggi:

- trasmutazione del Np per una riduzione del potenziale di radiotossicità a lungo termine (~ 1E6 y),
- trasmutazione del Am per una riduzione del carico termico, dimensione e costo del deposito geologico,
- trasmutazione del Cm per una riduzione del carico termico e del potenziale di radiotossicità a breve termine (~ 1E4 y).

La strategia della gestione degli AM in termini di trasmutazione nei reattori nucleari, che condiziona l'intero ciclo del combustibile nucleare, naturalmente dipende dalle proprietà nucleari dei vari isotopi, oltre la "Fisica" del reattore, e specialmente da eventuali competizioni tra eventi quali cattura e fissione. In generale i risultati di ogni simulazione sono fortemente influenzati dai dati nucleari, e quest'ultimi costituiscono un punto cruciale per le "decisioni" di ogni progetto neutronico. La Fig. 2 evidenzia l'impatto sullo stato di criticità del reattore dalla diversa origine dei dati nucleari; in particolare il caso n° 6 si riferisce al singolo isotopo ²⁴¹Am con una variazione di reattività di ~ 3000 pcm.

3. Contesto Internazionale

Le precedenti considerazioni sono parte integrante delle considerazioni di base per il Mandato dato dall'OECD/NEA/NSC (=Nuclear Science Committee) all' "Expert Group on

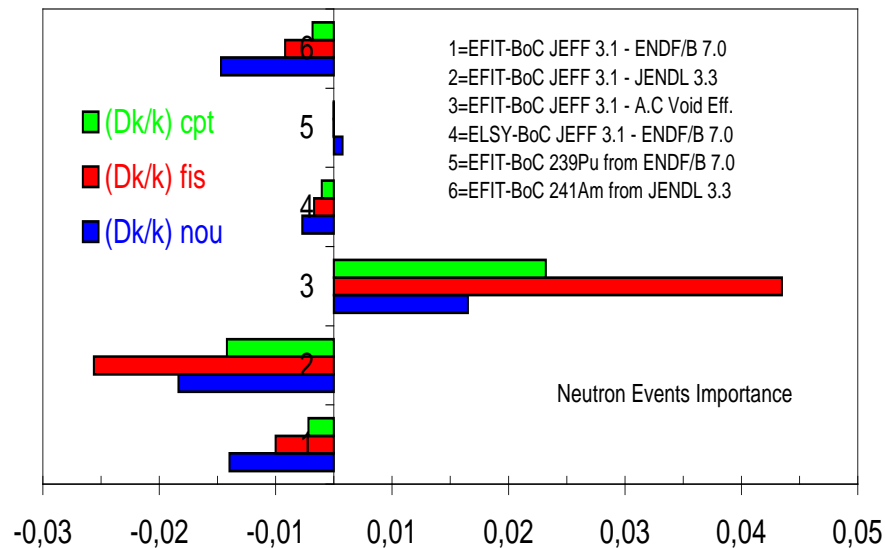


Fig. 2 Sensitivity analysis on the k_{eff} dependence from neutron balance components.

Integral Experiments for Minor Actinide Management, [5], in cui si legge:

“In particular, the necessity to manage MA becomes more obvious when plutonium is used as MOX fuel on a large scale in power reactors, such as light- and heavy- water reactors as well as fast reactors, because more americium will be accumulated in the spent fuel. It is, therefore, necessary to prepare carefully for the coming “age of MA management”.

In aggiunta alle complicazioni (dal punto di vista di progetto neutronico del nocciolo del reattore) dovute al caricamento degli AM, il Mandato fa esplicito riferimento al fatto che:

“...the accuracy of MA nuclear data is not sufficient. Hence, the detailed design of transmutation systems and the precise prediction of the composition of the spent fuel are difficult. This is because there is a lack of experimental measured MA data.”

mentre i dati nucleari per nuclidi quali $^{235,238}\text{U}$ e ^{239}Pu sono stati migliorati per più di 50 anni per via di esperimenti sia differenziali sia integrali utilizzando sistemi critici, reattori sperimentali e acceleratori.

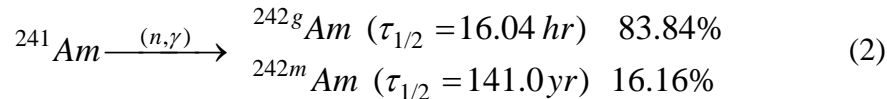
L’attività di questo gruppo internazionale ha per obiettivo la preparazione di un “state-of-art report on integral experiments for MA recycle”, con particolare attenzione a:

- Review of existing integral data (including review of MA sample amount used/required in experiment);
- Specification of missing experimental work to be required for MA management;
- Evaluation of target accuracy of nuclear data required for MA management.

Va sottolineato che gli esperimenti integrali su AM sono molto più difficili rispetto a quelli su Attinidi Maggiori (U, Pu) a causa di restrizioni presso le strutture (facilities), la difficoltà di preparazione del campione, la necessità di migliorare le tecniche di misura (per ridurre l’influenza della radiazione di fondo), e così via. Inoltre, le strutture (facilities) esistenti a livello globale, per misure e validazioni dei dati nucleari, sono piuttosto obsolete.

Pertanto, è stato considerato fondamentale intraprendere un’attività di revisione critica degli esistenti esperimenti integrali per la convalida dei dati nucleari degli AM, con adeguata garanzie di qualità per la loro trasmutazione nei reattori nucleari. Questa attività dovrebbe essere seguita da raccomandazioni sugli esperimenti integrali necessari per la convalida dei dati nucleari degli AM e l’istituzione di un quadro internazionale per facilitare esperimenti

integrali allo scopo dell' gestione degli AM. In questo contesto si inserisce l' attività ENEA, in seno al sumenzionato Expert Group, circa le esperienze di produzione di ^{242m}Am per cattura neutronica in ^{241}Am , ovvero:



per irraggiamento di campioni di ^{241}Am nel reattore termico sperimentale TRIGA, di proprietà ENEA, attività che nasce nell' ambito del progetto ENEA "Progetto 242", [6].

4. L'Esperimento per la Produzione dell' ^{242m}Am .

Costituisce l' unica misura di "Capture Rate Ratio" per la reazione di cattura neutronica, [7], pertanto molto importante nel contesto delle attività del NSC/EG. L' analisi critica ha evidenziato significative discrepanze per i valori attesi di ^{241}Am e ^{242m}Am sia tra le misure a breve e lunga durata dell' irraggiamento sia tra campioni "nudi" e campioni rivestiti di Cd. Diverse ragioni non soltanto fisiche (spettro del flusso neutronico, spessore del Cd, autoschermo ed altri), isolate o concomitanti, possono contribuire a dar luogo a risultati incorretti e incoerenti. Analogamente, le incertezze dei risultati sperimentali si comportano in modo opposto: all' aumentare della durata dell' irraggiamento neutronico aumentano le incertezze per l' ^{241}Am (da 5 a 15 volte), mentre diminuiscono moderatamente per l' ^{242m}Am . Tale comportamento potrebbe essere dovuto all' aumento della attivazione degli altri componenti dei campioni, a causa di una gestione impropria della fase post-irraggiamento, contribuendo a "sporcare" il segnale dei raggi gamma di rilevazione. È evidente che questa esperienza può essere considerata valida, nel contesto delle attività del NSC/EG, soltanto dopo la totale comprensione di risultati, [8]. Ciò richiede un' indagine supplementare dell' esperienza in questione. Infatti, sebbene la fattibilità sperimentale e validazione del modello di produzione e accumulo dell' ^{242m}Am si può considerare "dimostrato", le discrepanze e incoerenze osservate, così come l' aggiornamento dei dati nucleari, suggeriscono una "ri-visitazione e analisi critica" di tutte le fasi dell' esperienza.

Lo sviluppo in ENEA di concetti avanzati di reattore veloce, sia critico sia sotto-critico, raffreddato a metallo liquido pesante, con elevate prestazioni in termini di trasmutazione degli AM, richiede una accurata conoscenza delle proprietà nucleari di tutti i materiali inclusi evidentemente gli AM. Unitamente all' interesse per questa esperienza mostrata dal NSC/EG, l' ENEA ha deciso di indagare ulteriormente, tramite i principali attori della precedente campagna sperimentale, ossia: Politecnico di Milano e Università di Pavia, la suddetta esperienza allo scopo di individuare i punti critici in termini di progettazione, esecuzione e interpretazione dell' esperienza precedente, con una ulteriore estensione, ovvero la progettazione della stessa esperienza per spettri tipici di reattore veloce. La ragione di ciò risiede nel fatto che:

- la reazione di cattura neutronica in ^{241}Am è in competizione con la reazione di fissione del ^{242m}Am , per l' intervallo energetico di maggiore interesse per i reattori nucleari,
- il fattore di "conversione" ovvero il rapporto:

$$\sigma_{cpt} (^{241}\text{Am}) / \sigma_{abs} (^{242m}\text{Am})$$

è caratterizzato da un andamento spettrale riportato in Fig. 3 in cui si osserva che per energie tipiche di uno spettro veloce il rapporto di conversione risulta circa 10 volte superiore rispetto a quello relativo a energie tipiche di uno spettro termico.

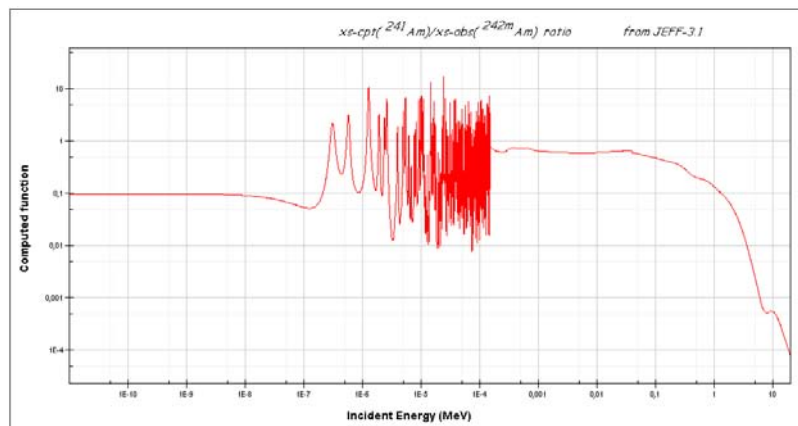


Fig. 3 ^{242m}Am “Conversion” ratio. From JEFF 3.1 Evaluated Nuclear Data Files.

È evidente che la regione energetica delle risonanze sarebbe più “redditizia” ma ciò richiede particolari tecniche di filtri di soppressione della componente termica dello spettro, con notevoli implicazioni dovute al:

- forte effetto dell’auto-schermo sui i neutroni della regione delle risonanze,
- forte depressione del flusso termico senza un significativo impatto su i neutroni della regione delle risonanze.

Non ultimo, una simile campagna di irraggiamento a spettro veloce potrebbe essere condotta utilizzando il reattore sperimentale a spettro veloce TAPIRO, sempre di proprietà ENEA.

Nelle pagine seguenti, in Appendice, vengono riportati i risultati e le conclusioni di questa indagine supplementare, sviluppata in collaborazione tra Politecnico di Milano e Università di Pavia.

5. Considerazioni finali.

Nel presente studio vengono analizzati alcuni aspetti critici afferenti al processo di trasmutazione degli Attinidi Minori nei reattori nucleari. Riguardano principalmente la questione della fattibilità e precisione di esperienze di irraggiamento neutronico di campioni di AM, atte al miglioramento della conoscenza delle sezioni d’urto delle diverse reazioni nucleari, nonché di altre proprietà nucleari.

Nell’ambito delle esperienze integrali, quali importanti strumenti di indagine e di conoscenza fisica, la “ri-visitazione” critica di precedenti campagne sperimentali, di produzione di ^{242m}Am via cattura neutronica in ^{241}Am condotte presso ENEA, ha evidenziato la complessità delle procedure, della strumentazione, dell’esecuzione e della gestione della fase post-irraggiamento dell’esperienza. La carenza di impianti di sperimentazione, la difficoltà intrinseca delle misure, (grandezze misurabili in intervalli di precisione paragonabili alle incertezze associate), la difficoltà di reperimento e/o fabbricazione dei campioni da irraggiare, implicano necessariamente una accurata progettazione dell’esperienza. Questa stessa ri-visitazione ha messo il luce sia la questione del rateo di formazione del ^{242m}Am , rispetto a quello di ^{242}Am , che fortemente condiziona il confronto simulazione-esperienza, sia la discrepanza simulazione-esperienza a causa dei dati nucleari considerati nell’interpretazione dell’esperienza stessa.

È stato inoltre confermato che sebbene fattibilità sperimentale e validazione del modello di accumulo di ^{242m}Am siano stati in linea di massima dimostrati, le discrepanze e “incoerenze” osservate persistono e principalmente sono dovute ad una non adeguata fase post irraggiamento.

Infine, considerazioni sulle potenziali penalizzazioni del ciclo del combustibile (e i conseguenti costi economici aggiuntivi) per reattori termici, quali strumenti di trasmutazione degli AM, rendono poco interessante una simile opzione. Conseguenza di ciò è la necessità di eseguire simili campagne di irraggiamento neutronico in impianti a spettro veloce, il che richiede una adeguata progettazione dell'esperienza.

Bibliografia.

- [1] U.S. DOE Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum: *A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems*, GIF-002-00, December 2002.
- [2] DS Working Group and SNETP Secretariat: *Sustainable Nuclear Energy - Technology Platform. Deployment Strategy*, May 2010.
- [3] First Meeting of the WPFC/TFHH on Comparative Study on Homogeneous vs. Heterogeneous Recycle of TRU in Fast Reactors Proceedings, Paris, 23-24 Mar. 2009.
- [4] F. Bianchi, L. Boucher, C. Coquelet, C. Garzenne, G. Glinatsis: *Collaborative Project for a European Sodium Fast Reactor. SP2.1-DG2 ESFR Scenario Deployment*. Nota Tecnica ENEA, Bologna UTFISSM – P9P4 – 001, 11 Apr. 2011.
- [5] OECD/NEA Nuclear Science Committee First Meeting of the Expert Group on Integral Experiments for Minor Actinide Management: *Annex: Mandate of the NSC Expert Group on Integral Experiments for Minor Actinide Management*, NEA, Paris, 3-4 Sept. 2009.
- [6] A. Dodaro et al., *Progetto 242 - Rapporto Finale sullo Sviluppo delle schede progetto (B7), (A6), (B5), (A3)*, ENEA Technical Note RAD-CAT(03)02, October 2003.
- [7] P. Benetti et al., *Production of ^{242m}Am* , Nucl. Instruments & Methods in Physics Research, A564 (2006) 482-485.
- [8] OECD/NEA Nuclear Science Committee First Meeting of the Expert Group on Integral Experiments for Minor Actinide Management: *Summary Report, Fifth Meeting*, 29-30 Sept. 2011, NEA, Paris, NEA/NSC / DOC (2011)7 16-Nov-2011.

Appendice

Ri-visitazione critica e ri-progettazione dell'esperienza di irraggiamento neutronico di campioni di ^{241}Am , indirizzate verso spettri veloci.

Supervisione dei Dott. Alessandra Cesana e Dott. Gian Luca Raselli

Sommario

Il bruciamento degli elementi transuranici per fissione o cattura neutronica è il modo più efficace oggi noto per ridurre la radiotossicità dei rifiuti radioattivi. Particolare importanza riveste ^{241}Am che è considerato tra i nuclidi più importanti per quanto riguarda la tossicità sia a breve che a lungo termine ed è presente in notevole quantità nei rifiuti nucleari. Il processo di trasformazione per cattura di neutroni o fissione può essere simulato numericamente ma alcuni parametri fondamentali quali le sezioni d'urto medie o i valori della probabilità di transizione ai diversi stati finali possibili, in molti casi non sono conosciute con l'adeguata precisione. Rivestono quindi notevole importanza gli esperimenti tendenti a validare ed eventualmente correggere i parametri nucleari di interesse che possano essere convenientemente condotti in reattori di ricerca

Nel presente rapporto vengono presentati:

- i risultati di simulazioni
 - l'analisi critica di precedenti esperienze
 - uno studio delle modalità applicabili ad una eventuale nuova misura presso il reattore TAPIRO.
- La scelta di questo reattore appare particolarmente interessante perché il suo spettro neutronico rappresenta molto bene quello di un reattore veloce e, anche se la potenza è molto bassa, il valore del flusso è ragionevolmente alto e adeguato a misure integrali di sezioni d'urto.

Lavoro svolto in esecuzione della Linea Progettuale LP1-D2b.

INDICE

1 Generalità	11
2 Calcolo della produzione dei principali attinidi dopo irraggiamento di ²⁴¹ Am.....	14
2.1 Composizione del campione di americio	14
2.2 Condizioni di irraggiamento.....	15
2.3 Risultati delle simulazioni.....	17
3 Tecniche di misura	19
3.1 Spettrometria di massa.	19
3.2 Spettrometria alfa.	19
3.3 Spettrometria gamma o X.	20
4 Ri-visitazione di precedenti esperienze.....	22
4.1 Irraggiamenti al reattore TRIGA	23
4.2 Irraggiamento al reattore TAPIRO.....	23
4.2.1 Simulazioni.....	24
4.2.2 Misura del campione con spettrometria gamma	25
5 Ri-progettazione esperienza	27
5.1 Campione	28
5.2 Irraggiamento e conteggio.....	28
5.3 Spettro neutronico	29
ACRONIMI.....	30
NOMENCLATURA	30
Sottoscritti	30
Soprascritti	30
BIBLIOGRAFIA.....	31

1 Generalità

Il bruciamento degli elementi transuranici per fissione o cattura neutronica è il modo più efficace oggi noto per ridurre la radiotossicità dei rifiuti radioattivi. La presente relazione riguarda il bruciamento di ^{241}Am che, insieme ai figli α -emettitori, è considerato tra i nuclidi più importanti per quanto riguarda la tossicità sia a breve che a lungo termine ed è presente in notevole quantità nei rifiuti nucleari.

Naturalmente la cattura neutronica o la fissione sia di ^{241}Am che delle impurezze necessariamente presenti nel campione porta alla formazione di prodotti di fissione e di altri attinidi, cioè di radionuclidi in genere molto tossici ed ovviamente non desiderabili. Quest'ultima affermazione non è però vera in assoluto: la cattura neutronica può dar luogo alla produzione di altri nuclidi fissili che rendano la miscela finale utile come combustibile nucleare.

Ad esempio particolare interesse riveste la produzione di $^{242\text{m}}\text{Am}$ che, grazie al valore elevato della sezione d'urto di fissione per neutroni termici (6400 barns), all'emivita convenientemente lunga (141 anni) e all'alto numero di neutroni pronti emessi per fissione [1] è un combustibile nucleare ideale che potrebbe rivelarsi molto utile per la produzione d'energia in condizioni particolari quali si riscontrano ad es. nel settore spaziale (strutture critiche di ridotte dimensioni e con particolari geometrie del nocciolo utilizzabili per la propulsione e la conversione diretta dell'energia nucleare in energia elettrica) [2,3].

L'ottimizzazione del processo di bruciamento richiede una attenta considerazione dello spettro neutronico all'interno del materiale da trasmutare.

Per l'irraggiamento sono stati proposti sia reattori nucleari termici e veloci che sistemi ibridi [4], costituiti da una sorgente di spallazione generata da un fascio di protoni d'alta energia (circa 1 GeV) inviato su opportune strutture sottocritiche.

La scelta della struttura e delle condizioni in cui effettuare gli irraggiamenti è legata alle finalità perseguite che, come detto sopra, si possono definire di due categorie:

- la distruzione di ^{241}Am con corrispondente creazione della minor quantità possibile d'ulteriori scorie;
- l'arricchimento di altri attinidi per produrre una miscela da utilizzare per altri scopi (ad es. l'arricchimento in $^{242\text{m}}\text{Am}$);

oppure prevedere un bruciamento in due stadi: una modifica della composizione ed una successiva distruzione.

Nel primo caso è largamente conveniente l'irraggiamento in un campo neutronico ben termalizzato.

Nel secondo, anche in considerazione del valore elevato dell'integrale di risonanza di ^{241}Am (che consente un "efficiente sfruttamento" dei neutroni epitermici), l'uso di neutroni termici appare poco conveniente: è perciò preferibile l'uso di neutroni di alta energia prodotti per spallazione, o l'irraggiamento nella parte veloce dello spettro di reattore termico, selezionata con opportuni filtri, o infine l'irraggiamento in un reattore veloce. Questi concetti sono ben illustrati in fig. 1.

In ogni caso l'intensità del campo neutronico deve essere la più alta possibile. In pratica, volendo ottenere risultati tangibili in tempi ragionevoli, ci si deve avvalere delle sorgenti più intense oggi disponibili in grado di produrre flussi neutronici dell'ordine di $10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

L'efficacia del processo di trasformazione di ^{241}Am per cattura di neutroni o fissione è legata a vari parametri quali: distribuzione in energia dei neutroni, valori del flusso e tempo di irraggiamento.

Il processo può essere simulato numericamente ma alcuni parametri fondamentali quali le sezioni d'urto medie o i valori della probabilità di transizione ai diversi stati finali possibili, in molti casi non sono conosciute con l'adeguata precisione.

Rivestono quindi notevole importanza gli esperimenti che possano validare ed eventualmente correggere i parametri nucleari di interesse. Una strada possibile è la verifica sperimentale delle sezioni d'urto integrali per mezzo d'irraggiamenti di campioni d'americio in differenti spettri neutronici, ottenibili in reattori di ricerca di bassa potenza sottoponendo quindi i campioni a modeste fluenze. In queste condizioni alcuni importanti parametri non sono verificabili sperimentalmente: ad esempio la diminuzione della massa di ^{241}Am , dell'ordine di poche centinaia di parti per milione, rientra negli errori sperimentali della misura della massa.

È perciò importante individuare il maggior numero di test possibili, in altre parole quali tra i nuclidi prodotti sono i migliori indicatori della correttezza dei parametri nucleari, quali fra essi sono analizzabili e le tecniche di misura e i tempi di raffreddamento più convenienti.

Ovviamente quanto maggiore è il numero d'indicatori, tanto maggiore è l'utilità del test e tanto minore l'errore sui risultati.

Esperimenti di questo tipo richiedono la determinazione della concentrazione dei nuclidi indicatori. Tra le varie tecniche di analisi sarà dato maggior risalto alle tecniche basate sulla misura della loro attività e per quanto riguarda lo spettro neutronico di riferimento, l'attenzione sarà focalizzata su uno spettro di reattore veloce analogo a quello esistente nel reattore TAPIRO, Enea-Casaccia [6].

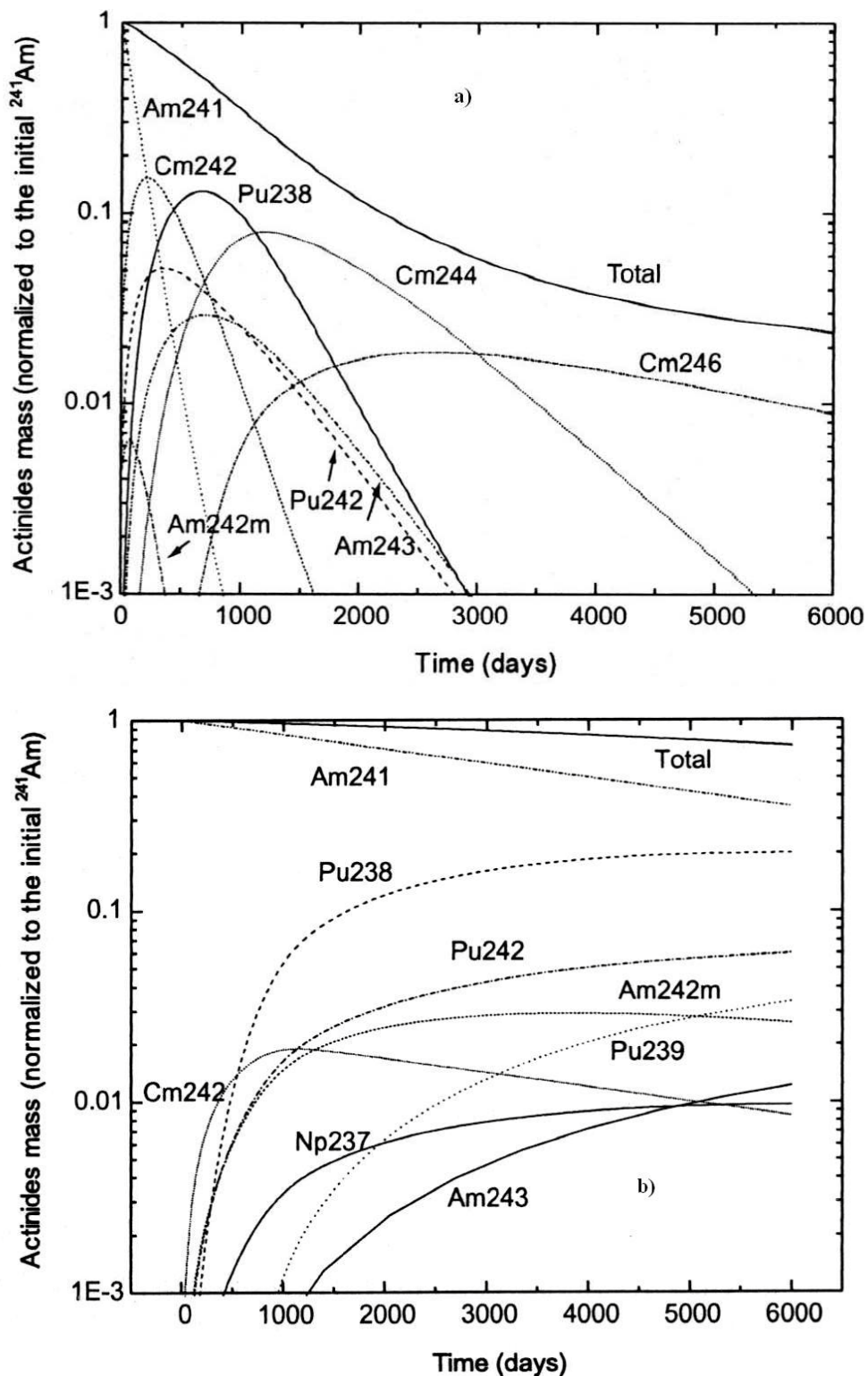


Figura 1: Evoluzione isotopica in un campione di ²⁴¹Am irradiato in uno spettro termico (a) ed in uno spettro veloce (b) con flusso costante di $10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [5].

2 Calcolo della produzione dei principali attinidi dopo irraggiamento di ^{241}Am

L'evoluzione temporale della composizione isotopica di un campione sottoposto a bruciamento dipende dalla durata dell'irraggiamento, dal livello di flusso e dallo spettro energetico dei neutroni.

In figura 2 è mostrata la catena isotopica che si forma a seguito dell'irraggiamento di ^{241}Am .

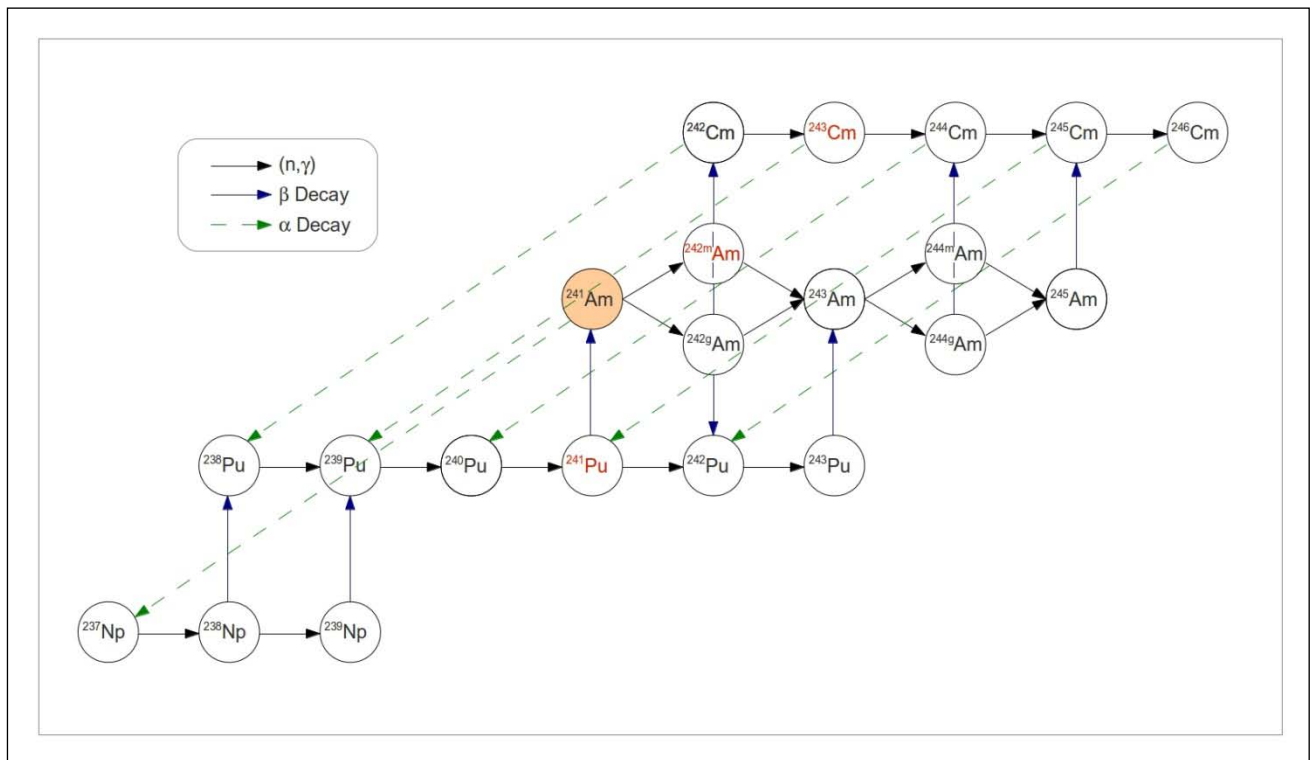


Figura 2: Catena di trasmutazione di ^{241}Am . Per i nuclidi indicati in rosso, la probabilità di fissione è dominante su quella di cattura radiativa per irraggiamenti in spettro neutronico veloce.

Per valutare l'attività di tutti i radionuclidi presenti alla fine di diversi tempi di irraggiamento (compresi i prodotti di fissione) è stato eseguito un calcolo con il codice MCB versione 1C [7].

2.1 Composizione del campione di americio

La composizione di un campione di ^{241}Am dipende dall'origine del medesimo.

Il modo più comune è quello di ottenerlo da riprocessamento di combustibile irraggiato, dove si forma principalmente dal decadimento di ^{241}Pu .

È quindi ragionevole pensare che nel campione possano essere presenti impurezze fissili e non in ragione del tipo di combustibile, storia del reattore e procedure di separazione utilizzate.

In una precedente esperienza (irraggiamento con e senza assorbitore di cadmio nel reattore TRIGA Enea-Casaccia) si è utilizzato nitrato d'americio estratto da ossidi misti U/Pu secondo il processo descritto in [8] in grado di produrre campioni di americio ad elevata purezza radiochimica.

È in ogni caso facile ottenere ^{241}Am ad elevata purezza (99.9%), anche se a costi relativamente elevati ed in piccole quantità.

Tra le contaminazioni si deve considerare quella di ^{237}Np ($T_{1/2} = 2.144 \times 10^6$ y) che proviene direttamente dal decadimento α di ^{241}Am ($T_{1/2} = 432.6$ y): la percentuale del numero di atomi di ^{237}Np rispetto al numero totale di atomi nel campione dipende dal tempo trascorso dalla separazione e, per tempi di invecchiamento t fino ad alcune decine di anni, varia linearmente secondo il prodotto $\lambda_{\text{Am-241}} \times t$ dove $\lambda_{\text{Am-241}}$ è la costante di decadimento di ^{241}Am .

La massa del campione da irraggiare non dovrebbe superare il milligrammo per le caratteristiche radiotossicologiche di ^{241}Am (emettitore α ad emivita lunga ed emissione γ associata non trascurabile) ed anche per la radioattività indotta dai prodotti di fissione creati.

Il contenitore deve essere un materiale ad elevata purezza, resistente ad alte dosi neutroniche e gamma, con piccoli valori di sezioni d'urto d'attivazione e che dia luogo a radioisotopi a breve emivita: può essere una fiala di quarzo, oppure un cilindro d'alluminio o di vanadio [10].

Nella simulazione il campione è stato così definito:

<p><u>Campione</u> Massa: 1 mg Composizione iniziale: ^{241}Am (98%) + ^{237}Np (0.2%) (ipotesi 1 anno dalla separazione). <u>Contenitore esterno</u> Materiale: Alluminio purezza 99.9% Forma geometrica: cilindro Dimensioni: Altezza = 8 mm, Diametro = 4 mm, Spessore delle pareti = 1 mm</p>
--

2.2 Condizioni di irraggiamento

La posizione d'irraggiamento è il Radial Channel 1, al bordo core del reattore TAPIRO (vedi fig.3). I flussi neutronici e la distribuzione spettrale alla massima potenza sono rappresentati in tab.1 [9]: i valori utilizzati nelle simulazioni sono quelli a 7.05 cm (ultima colonna). Si sono considerati tempi d'irraggiamento di 1000, 5000, 10000 ore, visti ciascuno come un unico intervallo.

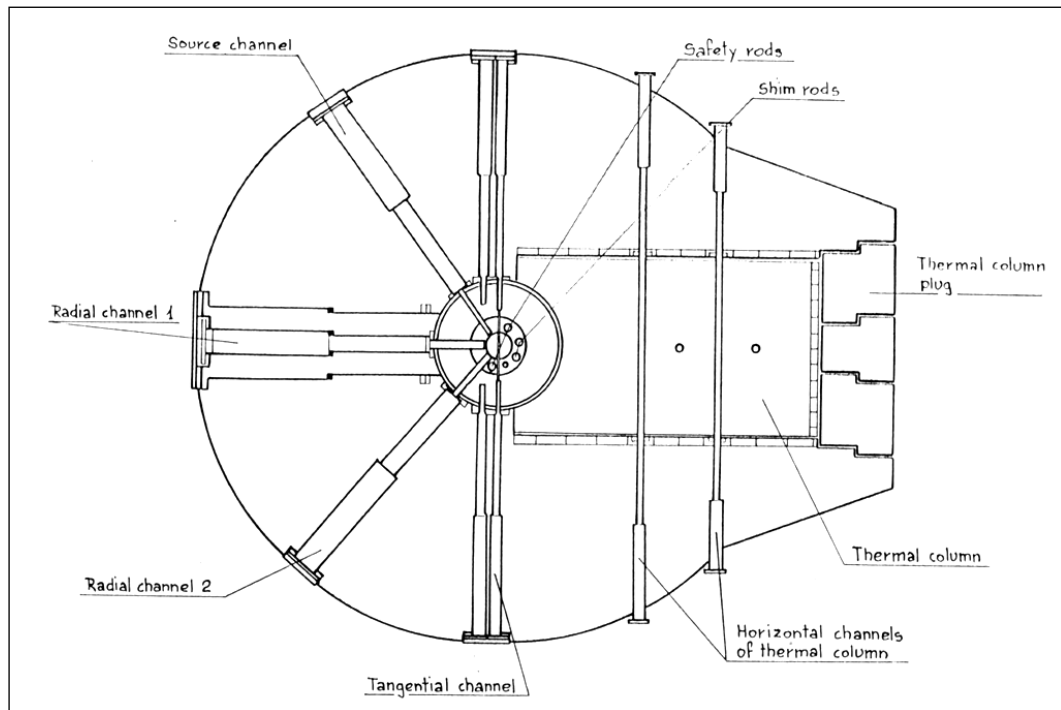


Figura 3: Sezione orizzontale del reattore Tapirò (ENEA–Casaccia). La posizione d'irraggiamento è al fondo del Radial channel 1.

Tabella 1: Flussi neutronici e distribuzione spettrale nel reattore Tapirò alla massima potenza.

Gruppo	R (cm)	0,25	1	1,65	2,15	3	4	5	5,895	6,445	7,05
	E_{max} (eV)										
1	1,45E+07	2,87E+11	2,84E+11	2,78E+11	2,70E+11	2,54E+11	2,28E+11	1,92E+11	1,44E+11	1,07E+11	7,80E+10
2	3,68E+06	4,69E+11	4,62E+11	4,53E+11	4,41E+11	4,15E+11	3,72E+11	3,15E+11	2,35E+11	1,78E+11	1,36E+11
3	2,23E+06	6,10E+11	6,02E+11	5,91E+11	5,74E+11	5,41E+11	4,88E+11	4,13E+11	3,18E+11	2,51E+11	2,01E+11
4	1,35E+06	6,35E+11	6,28E+11	6,16E+11	6,02E+11	5,69E+11	5,19E+11	4,51E+11	3,70E+11	3,16E+11	2,75E+11
5	8,21E+05	6,07E+11	6,00E+11	5,90E+11	5,77E+11	5,52E+11	5,10E+11	4,58E+11	3,98E+11	3,61E+11	3,34E+11
6	4,98E+05	4,96E+11	4,91E+11	4,84E+11	4,75E+11	4,56E+11	4,27E+11	3,91E+11	3,51E+11	3,30E+11	3,13E+11
7	3,02E+05	3,27E+11	3,23E+11	3,20E+11	3,15E+11	3,04E+11	2,89E+11	2,70E+11	2,51E+11	2,42E+11	2,35E+11
8	1,83E+05	1,87E+11	1,87E+11	1,85E+11	1,83E+11	1,78E+11	1,72E+11	1,65E+11	1,59E+11	1,58E+11	1,57E+11
9	1,11E+05	9,89E+10	9,84E+10	9,79E+10	9,72E+10	9,56E+10	9,37E+10	9,22E+10	9,25E+10	9,37E+10	9,51E+10
10	6,74E+04	5,00E+10	5,00E+10	5,00E+10	5,00E+10	5,00E+10	5,07E+10	5,20E+10	5,58E+10	5,90E+10	6,17E+10
11	4,09E+04	2,11E+10	2,13E+10	2,13E+09	2,13E+10	2,16E+10	2,21E+10	2,33E+10	2,58E+10	2,75E+10	2,96E+10
12	2,84E+04	9,51E+09	9,60E+09	9,72E+09	9,92E+09	1,04E+10	1,14E+10	1,31E+10	1,63E+10	1,85E+10	2,09E+10
13	1,50E+04	4,50E+09	4,58E+09	4,69E+09	5,00E+09	5,29E+09	6,16E+09	7,68E+09	1,04E+10	1,23E+10	1,42E+10
14	9,12E+03	2,33E+09	2,42E+09	2,52E+09	2,71E+09	3,15E+09	4,06E+09	5,71E+09	8,84E+09	1,12E+10	1,28E+10
15	5,53E+03	9,03E+08	9,44E+08	9,91E+08	1,09E+09	1,31E+09	1,80E+09	2,71E+09	4,56E+09	5,98E+09	7,00E+09
16	3,36E+03	2,78E+08	2,92E+08	3,06E+08	3,41E+08	4,13E+08	5,86E+08	9,16E+08	1,63E+09	2,16E+09	2,73E+09
17	2,04E+03	1,37E+08	1,51E+08	1,60E+08	1,99E+08	2,71E+08	4,89E+08	9,34E+08	2,14E+09	3,16E+09	3,75E+09
18	1,23E+03	3,09E+07	3,58E+07	4,06E+07	4,96E+07	7,26E+07	1,63E+08	3,77E+08	1,06E+09	1,70E+09	2,59E+09
19	7,48E+02	5,48E+06	5,33E+06	5,38E+06	6,97E+06	9,25E+06	2,42E+07	8,66E+07	3,32E+08	6,22E+08	8,33E+08
20	4,54E+02	2,37E+06	2,30E+06	2,44E+06	2,94E+06	3,94E+06	1,07E+07	3,99E+07	1,60E+08	3,04E+08	4,03E+08
21	2,75E+02	8,71E+05	8,70E+05	8,99E+05	8,78E+05	1,14E+06	3,16E+06	1,47E+07	1,06E+08	2,51E+08	3,56E+08
22	1,01E+02	8,07E+05	7,83E+05	9,23E+05	1,32E+06	2,25E+06	7,38E+06	2,78E+07	1,05E+08	1,95E+08	2,71E+08
23	2,26E+01	5,19E+05	6,79E+05	9,25E+05	1,12E+06	2,06E+06	6,45E+06	1,83E+07	5,79E+07	9,94E+07	1,36E+08
24	3,06E+00	3,37E+04	3,34E+04	4,39E+04	6,48E+04	1,26E+05	4,48E+05	1,63E+06	5,88E+06	1,07E+07	1,49E+07
25	4,14E-01	4,63E-02	4,51E-02	5,69E-02	7,30E-02	1,40E+03	4,25E-01	2,01E+00	4,05E+02	1,48E+04	2,39E+04
SUM		3,80E+12	3,76E+12	3,69E+12	3,62E+12	3,46E+12	3,20E+12	2,85E+12	2,45E+12	2,18E+12	1,99E+12

2.3 Risultati delle simulazioni

I risultati delle simulazioni sono riportati in tab. 2 e 3. In tab. 2 sono presentati i valori delle masse di tutti gli attinidi (vedi fig. 2) prodotti nel campione alla fine d'ogni periodo d'irraggiamento: come si può notare non è apprezzabile alcuna variazione di massa di ^{241}Am e per molti di essi si tratta di quantità non misurabili.

Tabella 2 : Risultati delle simulazioni per il campione di 1 mg di ^{241}Am . Le masse dei nuclidi prodotte sono riferite a fine irraggiamento.

Nuclide	Massa iniziale (g)	Massa prodotta (g) $T_{\text{irr}} = 1000$ ore	Massa prodotta (g) $T_{\text{irr}} = 5000$ ore	Massa prodotta (g) $T_{\text{irr}} = 10000$ ore
^{237}Np	2.000E-06	2.181E-06	2.898E-06	3.795E-06
^{238}Np		8.326E-13	1.109E-12	1.455E-12
^{239}Np		3.226E-20	5.157E-20	9,179E-20
^{238}Pu		2.423E-10	4.905E-9	1.549E-08
^{239}Pu		1.862E-14	1.151E-13	3.322E-13
^{240}Pu		2.683E-11	1.426E-10	2.872E-10
^{241}Pu		5.767E-17	1.521E-15	6.079E-15
^{242}Pu		6.037E-10	3.075E-09	6.165E-09
^{243}Pu		5.695E-18	2.918E-17	5.854E-17
^{241}Am	9.980E-04	9.978E-04	9.97E-04	9.960E-04
^{242g}Am		8.242E-11	8.241E-11	8.245E-11
^{242m}Am		1.316E-09	6.571E-09	1.312E-08
^{243}Am		4.538E-16	1.049E-14	4.155E-14
^{242}Cm		2.650E-09	9.767E-09	1.382E-08
^{243}Cm		9.877E-16	2.054E-14	6.843E-14
^{244}Cm			9.153E-20	6.980E-19
Massa totale	0.001	0.001	0.001	0.001

L'attività totale alla fine degli irraggiamenti è largamente dominata dall'attività degli attinidi, anzi da quella di ^{241}Am (vedi tab. 3), mentre l'attività dei prodotti di fissione è di un ordine di grandezza inferiore e diminuisce di circa un fattore mille dopo il primo anno di raffreddamento.

L'attività totale del contenitore d'alluminio è paragonabile a quella dei prodotti di fissione ma contribuisce in modo irrilevante alla dose totale: sono presenti i radioisotopi ^{28}Al ($T_{1/2} = 2.25$ m), ^{24}Mg ($T_{1/2} = 9.46$ m), ^{24}Na ($T_{1/2} = 15$ h).

Le loro attività (a fine irraggiamento) non cambiano all'aumentare del tempo d'irraggiamento e, tenendo conto di questi valori e delle rispettive emivite, diventano trascurabili dopo 30 giorni dalla fine dell'irraggiamento.

In tab. 3 sono presentate le attività alla fine dell'irraggiamento dei nuclidi prodotti. Non si prevede che tutti abbiano un'attività misurabile, tenendo conto anche del tempo di "raffreddamento"

necessario per eliminare il più possibile il contributo dei prodotti di fissione. I dati di tab. 3 si riferiscono perciò ai nuclidi ritenuti più significativi per una successiva misura.

Tabella 3: Attività a fine irraggiamento calcolate per il campione di 1 mg di ^{241}Am .

Nuclide	Attività (Bq) $T_{\text{irr}} = 1000\text{h}$	Attività (Bq) $T_{\text{irr}} = 5000\text{h}$	Attività (Bq) $T_{\text{irr}} = 10000\text{h}$
^{237}Np	56.8	75.4	98.8
^{238}Np	7980	10629	13936
^{238}Pu	153.6	3109	9819
^{240}Pu	0.225	1.198	2.410
^{242}Pu	0.088	0.448	0.899
^{241}Am	1.267E+08	1.266E+08	1.265E+08
^{242g}Am	2.46E+06	2.46E+06	2.46E+06
^{242m}Am	510.28	2548	5087
^{242}Cm	3.25E+05	1.20E+06	1.69E+06

In tab. 4 sono riportati i dati nucleari utili per le successive analisi.

Tabella 4 : Dati nucleari dei principali nuclidi presenti nel campione di ^{241}Am irraggiato [11].

Nuclide	Emivita	Modo di decadimento	Energia delle particelle emesse e probabilità di emissione (%)	Energia dei raggi γ (keV) e probabilità di emissione (%)
^{241}Am	432.6 y	α : 100.00 %	5442.80 13.1 % 5485.56 84.8 %	59.54 35.9 % (+ γ ad alta energia)
^{242g}Am	16.02 h	β^- : 82.70 % ϵ : 17.30 %	622.7* 45 % 664.8* 37 % elettroni Auger	42.13 0.039 % 44.54 0.0140 % 48.60 1.455E-4%
^{242m}Am (48.65keV)	141 y	IT: 99.55 % α : 0.45 %	5207.06 0.45 %	49.35 0.134 % 984.45 25.19% 1025.87 8.72% 1028.54 18.29% (emessi nel decad. di ^{238}Np)
^{237}Np	2.144×10^6 y	α : 100 %	4771.4 23.2 % 4788.0 47.64 %	311.90 38.5% (emesso nel decad. di ^{233}Pa)
^{238}Np	2.117 d	β^- : 100.00 %	263.5* 44.8 % 1247.9* 41.0%	984.45 25.19% 1025.87 8.72% 1028.54 18.29%
^{238}Pu	87.7 y	α : 100.00 %	5456.3 28.98% 5499.03 70.91 %	742.81 5.20E-6 % 766.39 2.20E-5 % 851.70 1.24E-6 %
^{240}Pu	6561 y	α : 100.00 %	5123.68 27.10 % 5168.17 72.80 %	160.308 4.02E-4 % 642.35 1.30E-5%
^{242}Pu	3.75×10^5 y	α : 100.00 %	4858.1 23.48 % 4902.2 76.49 %	103.50 0.00255 % 158.80 3.00E-4 %
^{242}Cm	162.8 d	α : 100.00 %	6069.4 25.92 % 6112.7 74.08%	984.45 2.06E-6% 1028.54 1.60E-6 %

* End point energy

3 Tecniche di misura

La validazione di risultati dei calcoli numerici richiede la misura più dettagliata possibile della composizione del campione dopo irraggiamento. Il problema non è in genere semplice a causa dell'attività e della complessità dei campioni da analizzare. Comunemente sono usate una o più delle tecniche seguenti: spettrometria di massa, spettrometria alfa, spettrometria X o gamma.

3.1 Spettrometria di massa.

Questa tecnica richiede una particolare procedura di preparazione dei campioni da analizzare che implica la distruzione di quello originale. Essa è la più accurata e quella meno soggetta ad interferenze tra i nuclidi presenti [12], ma è quella che richiede le attrezzature più costose e sofisticate e, a causa della complessità e della radiotossicità dei campioni può essere applicata solo in poche strutture dedicate. Non sarà considerata nel seguito.

3.2 Spettrometria alfa.

Il campione irraggiato è disciolto in soluzione ed in genere sottoposto a procedure di separazione radiochimica. Dalla soluzione si prelevano opportune aliquote con cui sono preparate le sorgenti da analizzare. Queste possono essere ottenute per deposizione elettrolitica o per evaporazione di una goccia di soluzione. Per ottenere la migliore risoluzione possibile con lo spettrometro alfa, è necessario produrre un deposito sottile e il più uniforme possibile. Idealmente la sorgente dovrebbe essere formata da uno strato monoatomico senza materiale estraneo aggiunto per evitare l'attenuazione delle particelle α . Lo strato deve essere robusto, chimicamente stabile e senza traccia di solventi. È naturalmente necessario valutare la frazione della soluzione originale recuperata in ogni sorgente. Le tecniche di separazione come quelle per la preparazione delle sorgenti sono ben note e collaudate da tempo per specifiche applicazioni [13].

In pratica la forte sproporzione tra i valori dell'attività (anche di un fattore 10^8) non rende una misura simultanea fattibile: per mantenere accettabile l'intensità per i radionuclidi principali, (supponiamo 100 decadimenti/s per ^{241}Am), le attività di quelli secondari sarebbero troppo basse per essere misurate (ad esempio 10^{-5} decadimenti/s per ^{242}Pu nel caso del massimo tempo di irraggiamento).

Si richiederebbe pertanto una separazione radiochimica.

La spettrometria alfa è molto più semplice e meno costosa della spettrometria di massa, anche se implica la distruzione del campione e la disponibilità di un laboratorio di radiochimica.

Per la determinazione dello spettro può essere utilizzato un rivelatore a barriera superficiale di tipo comunemente in commercio, ad es. un rivelatore con superficie 300 mm² e risoluzione di circa 20 keV all'energia d'interesse.

Nel caso del campione d'americio questa tecnica, eventualmente associata a tecniche di "unfolding" degli spettri [14], consentirebbe, se i valori delle attività fossero bilanciati, l'analisi simultanea dei nuclidi elencati in tab. 2.

3.3 Spettrometria gamma o X.

Questa tecnica è la più semplice e sicura dal punto di vista protezionistico; se si procede alla misura, dopo un adeguato tempo di raffreddamento atto a diminuire il contributo dei prodotti di fissione, può essere effettuata sul campione integro. Più delle altre tecniche di misura, la spettrometria gamma è soggetta a problemi d'interferenza in quanto l'intensità dei raggi γ emessi dal campione di ²⁴¹Am è elevata e lo spettro è particolarmente complesso (vedi fig. 4 e tab. 5) [15].

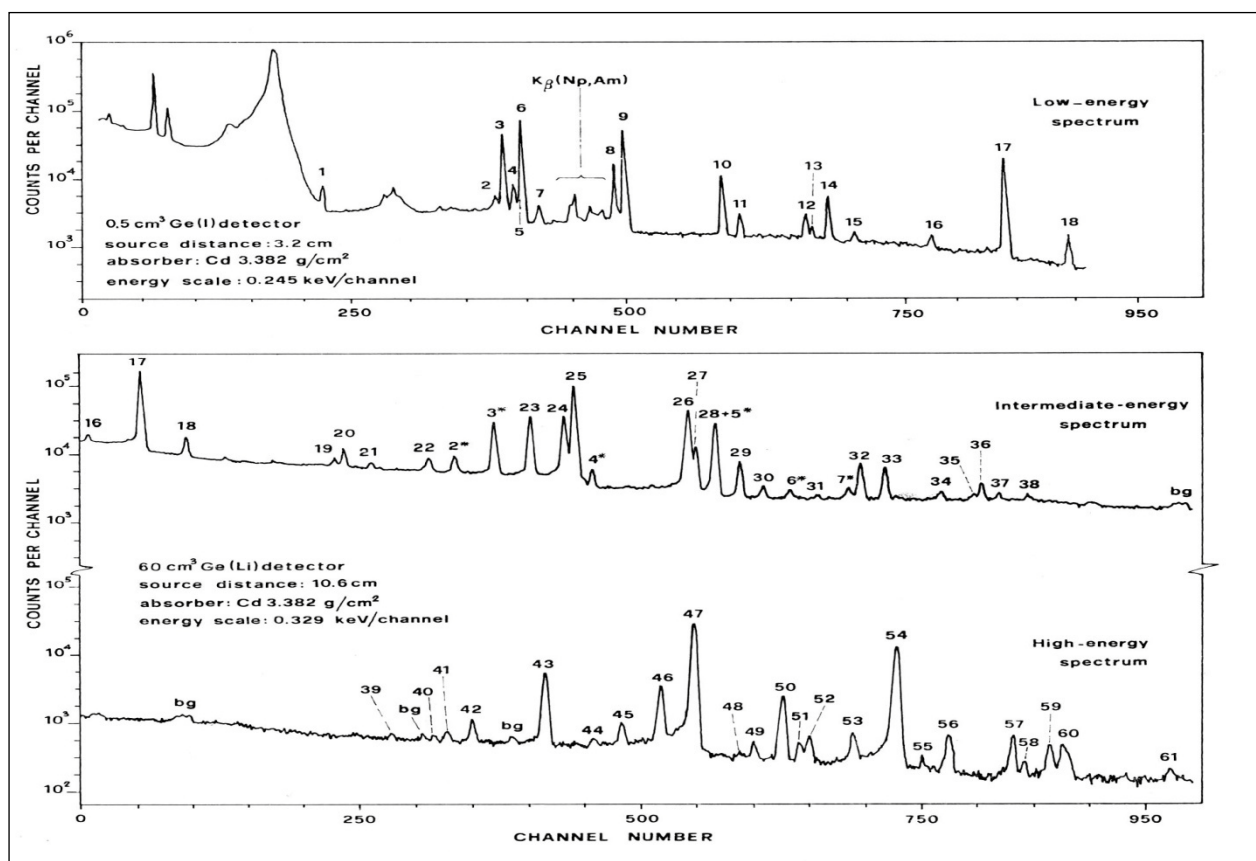


Figura 4: Spettri γ di ²⁴¹Am ottenuti con rivelatori al germanio.

Tabella 5 : Energia ed intensità di emissione dei raggi γ emessi nel decadimento di ^{241}Am . I numeri d'ordine si riferiscono ai picchi presenti nel grafico di fig. 4: sono segnati in grassetto i picchi più utili per la determinazione dell'attività.

AMERICIUM 241							
Line number	Energy (keV)	Intensity (γ /dis.)		Line number	Energy (keV)	Intensity (γ /dis.)	
1	59.536	3.59 E-1 (1)	^{241}Am	32	419.24	2.87 E-7 (2)	^{241}Am
2	97.072	1.18 E-5 (2)	Np K α_2	33	426.39	2.46 E-7 (2)	^{241}Am
3	98.951	2.03 E-4 (0.5)	^{241}Am	34	442.75	3.52 E-8 (7)	^{241}Am
4	101.066	1.90 E-5 (1.4)	Np K α_1	35	452.21	2.40 E-8 (10)	^{241}Am
5	102.08	—	Am K α_2	36	454.62	9.70 E-8 (3)	^{241}Am
6	102.966	1.95 E-4 (0.5)	^{241}Am	37	459.59	3.63 E-8 (7)	^{241}Am
7	106.52	—	Am K α_1	38	467.98	2.88 E-8 (7)	^{241}Am
8	122.994	1.00 E-5 (0.8)	^{241}Am	39	574.0	1.25 E-8 (15)	^{241}Am
9	125.292	4.08 E-5 (0.5)	^{241}Am	40	586.52	1.31 E-8 (15)	^{241}Am
10	146.557	4.61 E-6 (1)	^{241}Am	41	590.28	2.86 E-8 (7)	^{241}Am
11	150.11	7.40 E-7 (2)	^{241}Am	42	597.42	7.41 E-8 (4)	^{241}Am
12	164.58	6.67 E-7 (3)	^{241}Am	43	619.00	5.94 E-7 (1)	^{241}Am
13	165.93	2.32 E-7 (4)	^{241}Am	44	633.00	1.26 E-8 (15)	^{241}Am
14	169.557	1.73 E-6 (1)	^{241}Am	45	641.42	7.10 E-8 (4)	^{241}Am
15	175.09	1.82 E-7 (5)	^{241}Am	46	652.96	3.77 E-7 (2)	^{241}Am
16	{ 190.40	2.19 E-8 (20)	^{241}Am	47	662.420	3.64 E-6 (0.3)	^{241}Am
	{ 191.90	2.16 E-7 (4)	^{241}Am	48	675.8	6.40 E-9 (20)	^{241}Am
17	208.000	7.91 E-6 (0.5)	^{241}Am	49	680.06	3.13 E-8 (5)	^{241}Am
18	221.73	4.24 E-7 (1)	^{241}Am	50	688.77	3.25 E-7 (1.5)	^{241}Am
19	264.85	9.04 E-8 (4)	^{241}Am	51	693.49	3.68 E-8 (4)	^{241}Am
20	267.54	2.63 E-7 (2)	^{241}Am	52	696.44	5.34 E-8 (3)	^{241}Am
21	275.68	6.57 E-8 (5)	^{241}Am	53	709.41	6.41 E-8 (2)	^{241}Am
22	{ 291.21	3.08 E-8 (10)	^{241}Am	54	721.990	1.96 E-6 (0.4)	^{241}Am
	{ 292.78	1.42 E-7 (3)	^{241}Am	55	{ 729.52	1.33 E-8 (10)	^{241}Am
23	322.503	1.518 E-6 (0.6)	^{241}Am		{ 731.5	4.70 E-9 (30)	^{241}Am
24	332.354	1.490 E-6 (0.3)	^{241}Am	56	737.29	8.00 E-8 (3)	^{241}Am
25	{ 335.405	4.960 E-6 (0.3)	^{241}Am	57	755.91	7.60 E-8 (3)	^{241}Am
	{ 337.72	4.29 E-8 (5)	^{241}Am	58	759.46	1.67 E-8 (5)	^{241}Am
26	368.605	2.17 E-6 (0.3)	^{241}Am	59	766.92	5.00 E-8 (3)	^{241}Am
27	370.934	5.23 E-7 (0.8)	^{241}Am	60	{ 770.58	4.74 E-8 (4)	^{241}Am
28	376.595	1.383 E-6 (0.7)	^{241}Am		{ 772.13	2.66 E-8 (5)	^{241}Am
29	383.74	2.82 E-7 (1.5)	^{241}Am	61	801.9	1.36 E-8 (10)	^{241}Am
30	390.54	5.90 E-8 (4)	^{241}Am				
31	406.37	1.45 E-8 (15)	^{241}Am				

I rivelatori a stato solido come germanio iperpuro (HPGe) sono ad oggi i migliori spettrometri gamma sia per l'efficienza di rivelazione che per la risoluzione in energia nell'intervallo 30keV – 3 MeV. Sono anche disponibili rivelatori al germanio (BEGe) che consentono di estendere l'intervallo d'energia fino a circa 3 keV [16].

Una riduzione dei tempi di raffreddamento e più in generale un netto miglioramento della qualità dei risultati si può ottenere dotando il rivelatore di uno schermo attivo in anticoincidenza “Anti-Compton” (vedi fig.5):

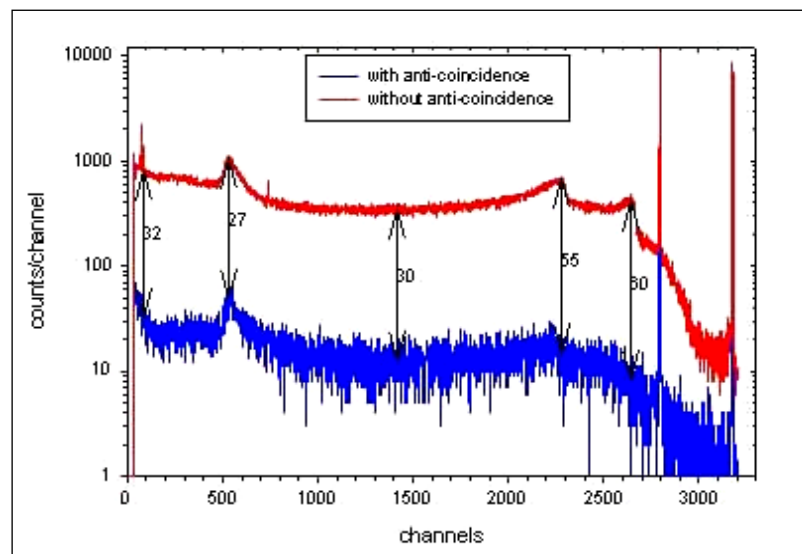


Figura 5: Riduzione della parte continua dello spettro gamma di ^{60}Co con sistema di anticoincidenza (schermo “Anti-Compton”) [17].

Questo tipo di schermo permette un’efficace riduzione della parte continua dello spettro e quindi favorisce (ed è il nostro caso) la misura di picchi molto deboli non interferenti con altri ma mascherati dal fondo continuo.

Da quanto detto sopra si può concludere che l’associazione di spettrometria gamma ed alfa dovrebbe dare risultati accurati e completi.

4 Ri-visitazione di precedenti esperienze

Allo scopo di verificare la possibilità, ovviamente con irraggiamenti in campi neutronici adeguati, di ottenere una miscela d’isotopi dell’americio significativamente arricchita in $^{242\text{m}}\text{Am}$ [18], negli anni 2004-2006 sono stati irraggiati 4 campioni di ^{241}Am nel canale centrale del reattore TRIGA ed uno a bordo core del reattore TAPIRO alla Casaccia.

La probabilità di formazione dello stato metastabile o fondamentale di ^{242}Am a seguito della reazione (n, γ) su ^{241}Am è ritenuta dipendente dall’energia dei neutroni incidenti (vedi fig. 6).

Dall’esame di questa figura ci si aspetta di ottenere i migliori risultati nell’arricchimento in $^{242\text{m}}\text{Am}$ passando dai campioni in alluminio a quelli in cadmio (irraggiati in uno spettro impoverito nella componente termica) a quello irraggiato al reattore TAPIRO in uno spettro veloce.

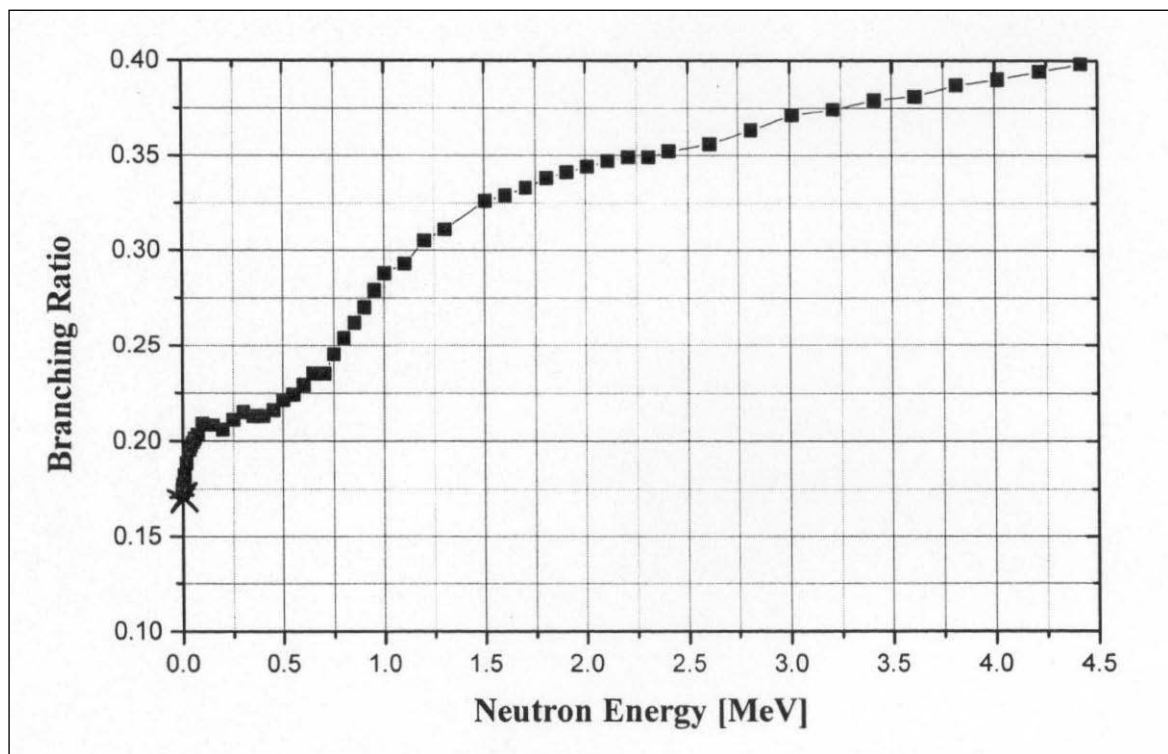


Figura 6: Probabilità di formazione dello stato meta stabile ^{242m}Am a seguito della reazione (n, γ) su ^{241}Am in funzione dell'energia dei neutroni [19].

4.1 Irraggiamenti al reattore TRIGA

I campioni erano costituiti da 0.3 mg circa di nitrato d'americio, depositato su piattelli d'alluminio a purezza nucleare. Due coppie di campioni (uno in fiala di quarzo ed uno racchiuso in contenitore di cadmio) sono stati irraggiati nel canale centrale in un flusso di $2.6 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, corrispondente alla massima potenza del reattore, per 30 e 120 ore rispettivamente.

Le modalità di conteggio e di calibrazione del rivelatore, i dettagli della misura in genere e i risultati sono riportati nel rif. [20].

Come commento generale si può affermare che l'accordo tra valori sperimentali e quelli calcolati è buono per quanto riguarda i campioni in alluminio e meno soddisfacente per i campioni schermati con cadmio.

4.2 Irraggiamento al reattore TAPIRO

Il campione, acquistato dal Radiochemical Centre Amersham England, consiste in 5 mg di AmO_2 ad alta purezza (99.99%), come verificato da una misura diretta mediante spettrometria gamma, ed è sigillato in una doppia capsula d'alluminio con dimensioni esterne 0.8 cm di

lunghezza e 0.4 cm di diametro. Esso proveniva da uno stock separato dal combustibile esaurito nel 1968, circa 38 anni prima dell'irraggiamento.

Il tempo d'irraggiamento previsto era di 200 ore complessive alla massima potenza (flusso di 1.99×10^{12} n cm⁻²s⁻¹) nella posizione Canale Radiale 1.

Il tempo d'irraggiamento reale è stato di 31 ore complessive ed è terminato a fine Settembre 2006.

Le misure del campione sono iniziate a febbraio e sono proseguite fino a settembre 2007 con tempi di raffreddamento da 4 mesi ad un anno. In occasione di questo lavoro di rivisitazione è stato eseguito un nuovo conteggio nel maggio 2012 a distanza di 6 anni dalla fine dell'irraggiamento.

4.2.1 Simulazioni

È stato eseguito un calcolo con il codice MCB versione 1C, utilizzando la stessa geometria e composizione per il contenitore nonché la stessa distribuzione spettrale e flusso neutronico utilizzati per le simulazioni del campione di 1 mg (vedi § 2.1 e § 2.2).

Il tempo d'irraggiamento è stato considerato come un intervallo continuo della durata di 31 ore.

La massa del campione alla data dell'irraggiamento era 4.364 mg di cui: ²⁴¹Am (94%) + ²³⁷Np (6%).

Dalla simulazione si sono ricavati i valori d'attività dei nuclidi prodotti nel campione a fine irraggiamento e a diversi tempi raffreddamento: in tab.6 sono riportati solo quei nuclidi le cui attività sono superiori ad 1 Bq a fine irraggiamento.

Tabella 6 : Attività di alcuni nuclidi presenti nel campione di ²⁴¹Am (4.364 mg) a fine irraggiamento (31 h) e dopo diversi tempi di raffreddamento.

Nuclide	Attività (Bq) T _{raff.} = 0	Attività (Bq) T _{raff.} = 1 anno	Attività (Bq) T _{raff.} = 3 anni	Attività (Bi) T _{rac.} = 6 anni
²³⁷ Np	6830	6999	7336	7839
²³⁸ Np	3.31E+05	0.274	0.271	0.267
²³⁸ Pu	5.2	210.5	254.7	252.0
²⁴¹ Am	5.21E+08	5.20E+08	5.19E+08	5.16E+08
^{242g} Am	7.47E+06	59.04	58.56	57.69
^{242m} Am	64.9	64.6	64.1	63.2
²⁴² Cm	56.6	26.9	1.33	0.143

A fine irraggiamento, come già rilevato nel caso del campione di 1 mg, la componente dominante dell'attività totale del campione è quella di ²⁴¹Am : quella dovuta all'attivazione della capsula di

alluminio è 4.95×10^7 Bq con la seguente ripartizione: ^{28}Al (21%), ^{27}Mg (45%), ^{24}Na (34%) ed infine quella dei prodotti di fissione è 3.43×10^7 Bq.

La variazione nel tempo dell'attività dei prodotti di fissione è mostrata in fig. 7.

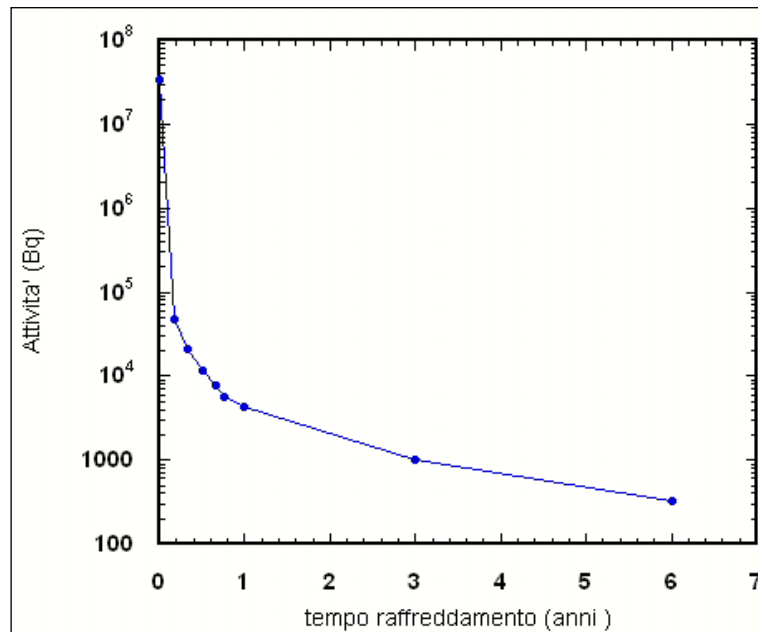
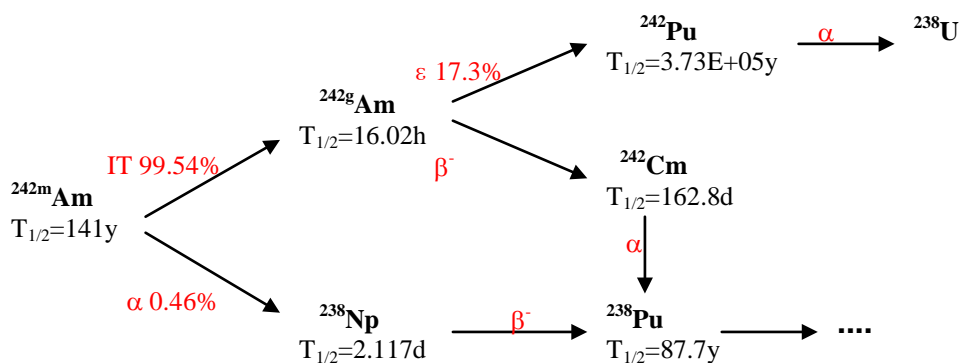


Figura 7: Variazione temporale dell'attività dei prodotti di fissione nel campione di ^{241}Am (4.364 mg).

4.2.2 Misura del campione con spettrometria gamma

La concentrazione di $^{242\text{m}}\text{Am}$ è stata ottenuta dalla misura diretta sul campione integro. La transizione allo stato fondamentale (99.5%) è dominata dalla conversione interna, che riduce la probabilità d'emissione γ a 1.46×10^{-6} : si è scelto di considerare il decadimento α (0.46%) e di misurare l'intensità dei raggi γ di 984.45 keV e di 1028.54 keV emessi nel decadimento di ^{238}Np (vedi schema).



Si è utilizzato un rivelatore HPGe 25% d'efficienza e risoluzione energetica di 1.8 keV a 1332.5 keV, inserito in uno schermo di rame OFHC per ridurre il fondo ambientale.

I dati sono stati acquisiti con la catena d'alimentazione, amplificazione e conversione *InSpectorTM Canberra* ed utilizzato il programma di analisi *GenieTM 2000*.

Allo scopo di ridurre il tempo morto della catena d'acquisizione sotto il 5%, si è inserito un assorbitore di cadmio 0.8 cm di spessore tale da assorbire completamente i raggi γ di 59 keV.

Prima del trasporto alla Casaccia si è effettuata una misura di "bianco".

A parte l'eccessiva riduzione del tempo d'irraggiamento rispetto alle richieste, due problemi hanno in ogni caso complicato e reso poco attendibile le misure eseguite nel 2007:

- Il campione, separato da molti anni, conteneva un'alta concentrazione di ^{237}Np (circa il 6%): di conseguenza a fine irraggiamento nel campione era presente una notevole attività di ^{238}Np derivante da ^{237}Np (n,γ), di parecchi ordini di grandezza maggiore dell'attività all'equilibrio derivante dal decadimento di $^{242\text{m}}\text{Am}$.
- Anche dopo un tempo di attesa di alcuni mesi, tale da assicurare la scomparsa di questa componente dell'attività, il fondo generato dai prodotti di fissione (a causa dell'elevata massa di ^{241}Am) era tale da impedire una buona misura dell'intensità dei gamma di interesse.

In occasione di questo lavoro di ri-visitazione è stato eseguito un nuovo conteggio a distanza di 6 anni dalla fine irraggiamento che ha dato un buon risultato. L'analisi dei dati è riferita quindi alla misura del 2012.

L'attività di $^{242\text{m}}\text{Am}$ è calcolata solo dall'area del picco corrispondente all'energia di 984.45 keV nello spettro ottenuto con un tempo di acquisizione di 2×10^6 secondi secondo la relazione:

$$A = \frac{N}{\Delta t \times FEP \times P} \quad (1)$$

N = area netta di picco

Δt = tempo d'acquisizione

FEP = efficienza (Full Energy Peak) del rivelatore

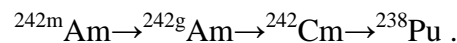
P = probabilità assoluta di emissione

Le modalità di misura non sono cambiate rispetto alle prove del 2007, ma si è ritenuto opportuno procedere ad una nuova calibrazione in efficienza del rivelatore a causa notevole tempo intercorso.

L'efficienza di picco relativa in funzione dell'energia è stata calcolata con un programma che tiene conto: della geometria, della presenza degli assorbitori di Cd e dell'autoassorbimento [21].

La curva è stata normalizzata usando due sorgenti di ^{241}Am : la targhetta stessa la cui attività è usata come standard interno ed una sorgente certificata di attività $(4.90 \pm 0.10) \times 10^5$ Bq alla data della misura. Per la normalizzazione sono stati utilizzati i γ più intensi nell'intervallo energetico 208-722 keV [15]. L'accordo tra le due misure è risultato molto soddisfacente e ha portato ad una stima dell'errore del 3% sull'efficienza, nell'intervallo d'energia tra 200–1000 keV.

L'emissione del γ di 984.45 keV può derivare anche dal decadimento alternativo:



Ciò porterebbe ad aumentare la probabilità d'emissione. Dai dati di letteratura [22] si ottiene una probabilità di formazione di 2×10^{-4} %, che è stata trascurata nel conto successivo.

I valori ottenuti sono:

Area di picco (984.45 keV)	$(2.12 \pm 0.11) \times 10^{-3}$ conteggi/s
Fondo da misura "bianco"	$(0.70 \pm 0.12) \times 10^{-3}$ conteggi/s
Efficienza assoluta di picco (FEP)	(0.0110 ± 0.0003) γ rivelati / γ emessi
Probabilità di decadimento a ^{238}Np	$(0.459 \pm 0.012)\%$ [22]
Probabilità di emissione γ da ^{238}Np	$(27.8 \pm 0.8)\%$ [22]

e l'attività di ^{242m}Am , ricavata secondo la (1) :

$$A_{\text{per.}} = (101 \pm 12) \text{ Bq} \text{ riferita alla data: giugno 2012}$$

Dalle simulazioni si è ottenuto, con questo tempo di raffreddamento (vedi tab. 6):

$$A_{\text{calc.}} = 63 \text{ Bq}$$

Da quest'unica misura non è possibile stabilire l'origine della differenza: può essere ad esempio da attribuire alla sezioni d'urto (includendo la probabilità relativa di formazione dello stato metastabile) e/o alla conoscenza dello spettro neutronico nel campione. E' inoltre noto che la valutazione della probabilità di produzione dello stato metastabile ^{242m}Am ($E = 49.35$ keV) dalla cattura neutronica di ^{241}Am è legata fortemente alla biblioteca di sezioni d'urto adottata nelle simulazioni [23].

5 Ri-progettazione esperienza

Lo spettro neutronico a bordo core del reattore TAPIRO rappresenta molto bene quello di un reattore veloce: anche se la potenza è molto bassa, cosa vantaggiosa in termini di sicurezza, il valore del flusso è ragionevolmente alto e adeguato a misure integrali di sezioni d'urto ed infine è l'unico reattore di questo tipo esistente in Italia. Per questi motivi è auspicabile un suo impiego per la

validazione dei parametri nucleari e programmi di calcolo in vista del bruciamento o comunque la trasformazione degli attinidi presenti nel combustibile nucleare spento.

Sulla base delle precedenti esperienze e dei risultati delle simulazioni descritti in questo rapporto, saranno esposte alcune considerazioni utili per futuri esperimenti, con riferimento al bruciamento di ^{241}Am . La procedura sperimentale prevede la misura della concentrazione del maggior numero possibile dei nuclidi prodotti a seguito di un opportuno irraggiamento. I suggerimenti esposti nel seguito sono anche dettati dall'intenzione di rendere le procedure di misura le più semplici possibili.

5.1 Campione

Secondo quanto anticipato nel § 2.1 il campione di ^{241}Am da irraggiare dovrebbe avere una massa non superiore ad 1 mg ed essere sigillato in una capsula di alluminio o vanadio. Si consiglia di preparare due esemplari di dimensioni tali da poter essere irraggiati simultaneamente e di conservarne una parte con funzione di "bianco". La separazione chimica dal combustibile dovrebbe essere recente per ridurre il contenuto di ^{237}Np e, nella fase di estrazione, dovrebbero essere ridotti al minimo gli elementi (es. Fe) che possono dar luogo per cattura neutronica a radionuclidi a lunga emivita [20].

È opportuno conoscere la composizione chimica e verificare prima dell'irraggiamento il valore della massa di ^{241}Am e l'eventuale presenza di altri radionuclidi nei campioni sigillati, mediante spettrometria gamma.

5.2 Irraggiamento e conteggio

La posizione di irraggiamento prevista è a bordo core in fondo al Radial Channel 1 e il tempo di irraggiamento dovrebbe essere dell'ordine di 1000 ore o proporzionalmente meno nel caso la massa di ^{241}Am sia maggiore.

Come discusso al § 4 i risultati più completi e accurati si ottengono associando due tecniche di misura: la spettrometria gamma ed alfa.

Dei due campioni irraggiati, uno, integro, dovrebbe essere usato per la misura dell'attività con spettrometria gamma (^{238}Pu , $^{242\text{m}}\text{Am}$, prodotti di fissione) ed il secondo, dopo separazione radiochimica, per quella degli attinidi con spettrometria alfa.

È opportuno seguire il decadimento dell'attività del campione con misure periodiche dell'intensità gamma, a partire dal fine irraggiamento. Queste misure permetteranno di stabilire il tempo di

raffreddamento minimo per la separazione chimica e, nel caso del conteggio gamma, la geometria di conteggio e l'opportunità di inserimento di assorbitori.

Per quanto riguarda la misura tramite spettrometria gamma è ragionevole pensare a tempi di raffreddamento di almeno sei mesi.

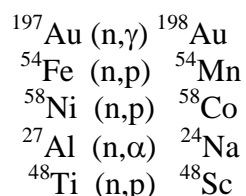
Come già detto questo tempo può essere consistentemente ridotto e la qualità della misura certamente migliorata, dotando il rivelatore, oltre allo schermo passivo, anche di uno schermo attivo "Anti-Compton".

5.3 Spettro neutronico

Il confronto tra i dati sperimentali e le valutazioni teoriche richiede la conoscenza più accurata possibile dello spettro energetico dei neutroni nella zona di irraggiamento. Esso è noto in varie posizioni del reattore TAPIRO ma, data l'importanza di questo parametro, sembra opportuno associare ad ogni misura una sua verifica.

Considerando le condizioni di sperimentali (misura in una piccola cavità con dose gamma e neutronica molto elevata) la tecnica ampiamente utilizzata è l'attivazione multipla (MFA) [24]. Essa consiste nel misurare le attività di radioisotopi prodotti da reazioni indotte da neutroni in diversi bersagli e paragonare le diverse velocità di reazione sperimentali con i rispettivi valori calcolati in uno spettro di prima approssimazione, ottenuto ad es. da una simulazione. Le differenze tra valori calcolati e misurati sono usate per aggiustare lo spettro di prima approssimazione con una procedura iterativa. Se il numero e il tipo di reazioni usate è adeguato e i valori delle sezioni d'urto sono ben note, questa tecnica fornisce buoni risultati, nel senso che produce uno spettro di neutroni che consente di calcolare altre velocità di reazione con approssimazioni di pochi percento.

Alcune reazioni, che si sono dimostrate in passato adatte per una misura nel reattore TAPIRO [25], sono le seguenti:



I valori delle sezioni d'urto per queste reazioni consentono buone misure con masse del bersaglio di qualche decina di milligrammi e tempi di irraggiamento dell'ordine dell'ora.

ACRONIMI

BEGe	Broad Energy Germanium
FEP	Full Energy Peak
HPGe	High Purity Germanium
MCB	Monte-Carlo Continuous Energy Burnup
MFA	Multiple Foils Activation
OFHC	Oxygen-Free High Conductivity

NOMENCLATURA

A	attività [decadimenti/s]
Δt	intervallo di acquisizione [s]
P	probabilità di emissione [%]
$T_{1/2}$	emivita [y,d,h,m]

Sottoscritti

<i>irr.</i>	irraggiamento
<i>raff.</i>	raffreddamento

Soprascritti

m	stato metastabile
g	stato fondamentale

BIBLIOGRAFIA

- [1] R. Vandenbosh, J. R. Huizenga, Nuclear Fission, Academic Press-New York and London (1973), 338
- [2] C. Rubbia, Fission fragments-heating for space propulsion, CERN SL-Note-2000-6 (2000)
- [3] Y. Ronen, M. Kurtzhand, L. Droizman, E. Shwageraus, Conceptual design of Americium nuclear battery for space power applications, Journal of Propulsion and Power, 23, (4), 2007, 874-880
- [4] Accelerator-driven Systems (ADS) and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles – A Comparative Study, Nuclear Energy Agency Report nea3109-ads (2002), <http://www.oecd-nea.org/ndd/reports/2002/nea3109.html>
- [5] V. Berthou, C. Degueldre, J. Magill, Transmutation characteristics in thermal and fast neutron spectra: application to americium, J. Nucl. Mat., 320, (2003), 156-162
- [6] A. D'Angelo, M. Martini, M. Salvatores, Energia Nucleare, 20, (1973), 614-621
- [7] Jerzy Cetnar, W. Gudowski and J. Wallenius: User Manual for Monte-Carlo Continuous Energy Burnup (MCB) Code –Version 1C, KTH, Stockholm, (2001)
- [8] A. Dodaro, et al., ENEA Technical Note RAD-CAT(03)02, Ottobre 2003
- [9] ENEA- Comunicazione privata
- [10] S.Koyama, T. Mitsugasira, Chemical Analysis of Americium Samples Irradiated under Fast Neutron Spectra, J. Nucl. Science and Technology, Supplement 6 (2008), 55-64
- [11] National Nuclear Data Center, Chart of Nuclides, <http://www.nndc.bnl.gov/chart/>
- [12] G. Fioni, et al., Incineration of ²⁴¹Am induced by thermal neutrons, Nucl. Physics A 693 (2001), 546-564
- [13] S.K. Aggarwal, R.K. Duggal, H.C. Jain, Alpha Spectrum Evaluation Method for the simultaneous Determination of Plutonium, Americium and Curium, J. Radioanal. Nucl.Chem., Letters, 107 (5), (1986), 263-277
- [14] T. Siiskonen, R.Pöllänen, New Approach to Alpha Spectrum Analysis: Iterative Monte Carlo Simulations and Fitting, Progress in Nuclear Science and Technology, 2, (2011), 437-441
- [15] A. Cesana, G. Sandrelli, V. Sangiust, M. Terrani, Gamma ray spectra of ²³³U, ²³⁷Np, ^{238/239/240/241}Pu, ²⁴¹Am samples, En.Nucl., 26, (1979), 526-541
- [16] G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurement John Wiley & Sons, 4th ed. John Wiley & Sons, (2010), 415-466

- [17] Institute of Spectrometry and Radiation Protection, <http://www.isus.de>
- [18] P. Benetti, A. Cesana, L. Cinotti, G. L. Raselli, M. Terrani, Americium 242m and its potential use in space applications, Journal of Physics: Conference Series, vol. 41, 2006, 161-168
- [19] F.M. Mann and R.E. Schenter: Calculated Neutron Capture Cross Sections to the Americium Ground and Isomer States, Nuclear Sc.& Eng., 63, (1977), 242-249
- [20] P. Benetti, A. Cesana, A. Dodaro, S. Mongelli, G. Raselli, M. Terrani, F. Troiani, Production of ^{242m}Am Nucl, Instr. and Meth. A 564, (2006), 482-486
- [21] A. Cesana, M. Terrani, Gamma-ray Activity Determination in Large Volume Samples with a Ge-Li Detector, Anal. Chem., 49, (1977), 1156-1159
- [22] R.B. Firestone (Ed.), Table of Isotopes, eighth ed., Wiley. New York, (1996)
- [23] L.Golyand, E. Shwageraus, Y. Ronen, Effect of ²⁴¹Am(*n*, γ) Reaction Branching Ratio on Fuel Cycle and Reactor Design Characteristics, Nuclear Sci.& Eng., 161, (2009), 289-302
- [24] W.L. Zijp, Review of activation methods for the determination of neutron flux density spectra, Reactor Centrum Nederland Report RCN-241, Petten, (1976)
- [25] A. Cesana, G. Sandrelli, V. Sangiust, M. Terrani, Consistency of Cross Section Data in Integral Experiments, Proceedings of "5th ASTM-EURATOM Symposium on Reactor Dosimetry", GKSS Geesthacht F.R.G. September 24-28 1984, Vol.2 , 857-866