



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



Ministero dello Sviluppo Economico

RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Rivisitazione critica e riprogettazione dell'esperienza di irraggiamento
neutronico di campioni di ^{241}Am , indirizzata verso spettri veloci

Gian Luca Raselli

RIVISITAZIONE CRITICA E RIPROGETTAZIONE DELL'ESPERIENZA DI IRRAGGIAMENTO NEUTRONICO DI
CAMPIONI DI ^{241}Am , INDIRIZZATA VERSO SPETTRI VELOCI

Gian Luca Raselli Università di 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

Titolo

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

Descrittori

Tipologia del documento: Allegato Tecnico all'Accordo di Collaborazione tra ENEA e Università degli Studi di Pavia, Laboratorio Energia Nucleare Applicata (LENA).

Collocazione contrattuale:

Argomenti trattati: Accordo di Programma MSE-ENEA sulla Ricerca di Sistema Elettrico, Piano Annuale di Realizzazione 2011. Tematica di Ricerca: Energia Nucleare, Progetto 1.3.1 "Nuovo Nucleare da Fissione: collaborazioni internazionali e sviluppo competenze in materia nucleare".

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 ²⁴¹Am 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.


Note

Attività svolte sotto la supervisione del Dott. Gian Luca Raselli,

Copia n.

In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	25/07/2012	NOME	Gian Luca Raselli		
			FIRMA	<i>Gian Luca Raselli</i>		
REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-LP1-D.2b	0		2	25

INDICE

1 Generalità	3
2 Calcolo della produzione dei principali attinidi dopo irraggiamento di ²⁴¹ Am	6
2.2 Composizione del campione di americio	6
2.2 Condizioni di irraggiamento	7
2.3 Risultati delle simulazioni	9
3 Tecniche di misura	11
3.1 Spettrometria di massa	11
3.2 Spettrometria alfa	11
3.3 Spettrometria gamma o X	12
4 Ri-visitazione di precedenti esperienze	15
4.1 Irraggiamenti al reattore TRIGA	16
4.2 Irraggiamento al reattore TAPIRO	16
4.2.1 Simulazioni	17
4.2.2 Misura del campione con spettrometria gamma	18
5 Ri-progettazione esperienza	21
5.1 Campione	21
5.2 Irraggiamento e conteggio	21
5.3 Spettro neutronico	22
ACRONIMI	23
NOMENCLATURA	23
Sottoscritti	23
Soprascritti	23
BIBLIOGRAFIA	24

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.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-LP1-D.2b	0		4	25

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].

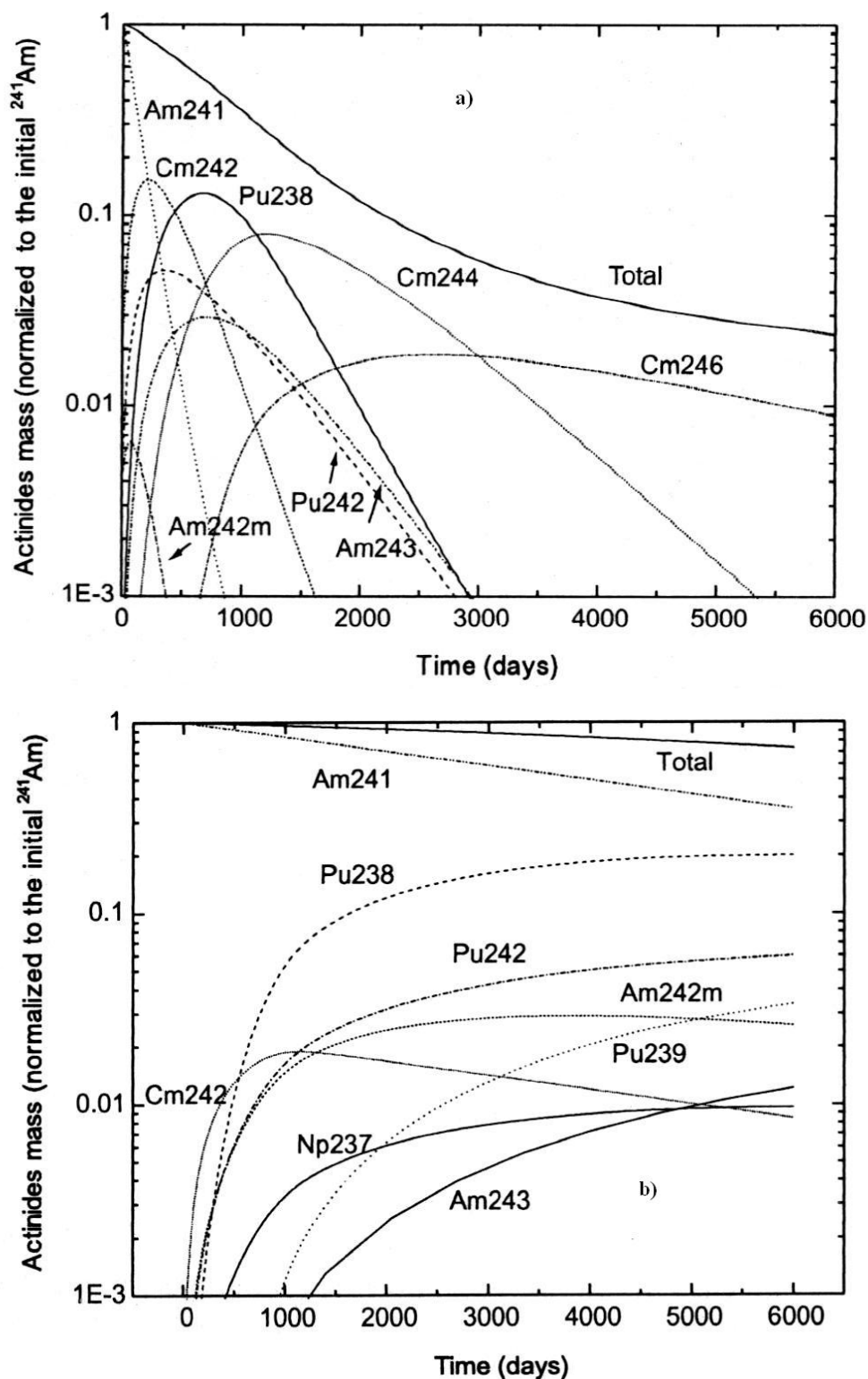


Figura 1: Evoluzione isotopica in un campione di ^{241}Am irraggiato in uno spettro termico (a) ed in uno spettro veloce (b) con flusso costante di $10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [5].

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 .

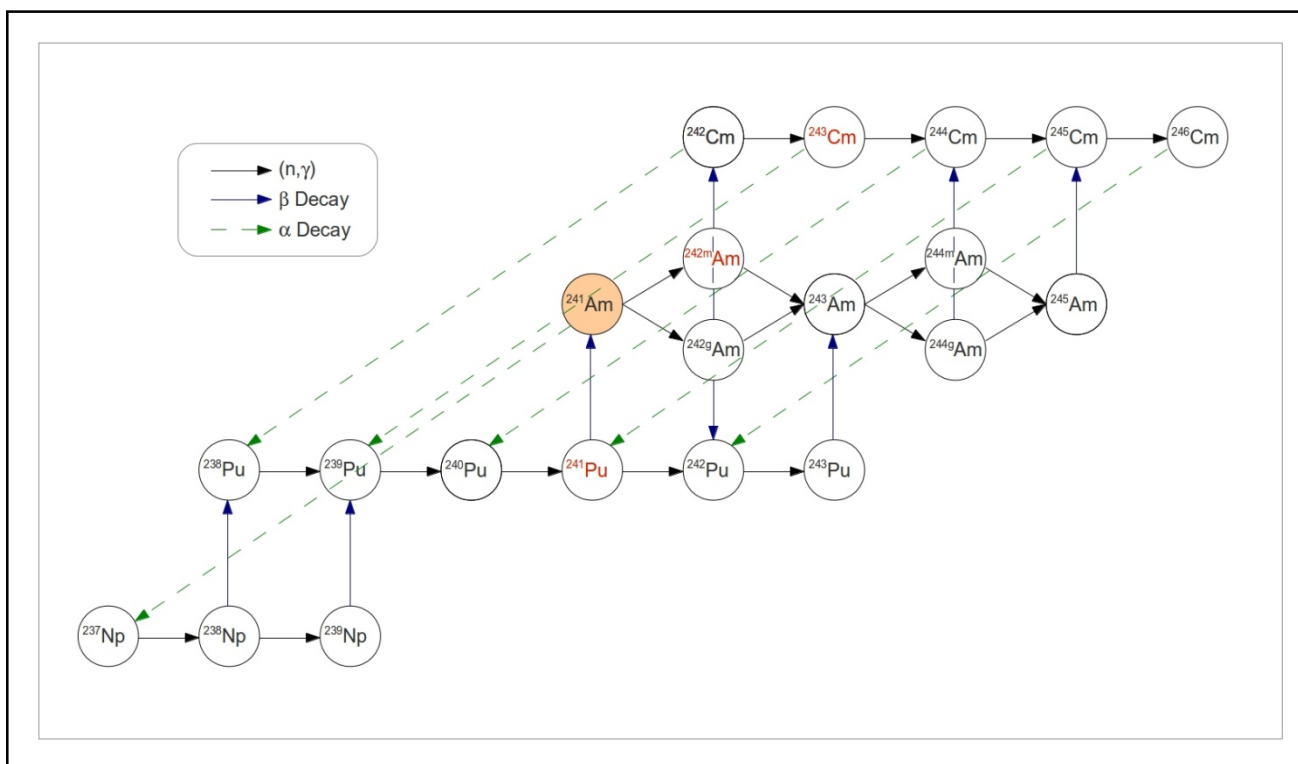


Figura 2: Catena di trasmutazione di ^{241}Am . Per i nuclidi indicati in rosso, la probabilità di fissione è dominante su quella di cattura radiativa per irraggiamenti in spettro neutronico veloce.

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].

2.2 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.

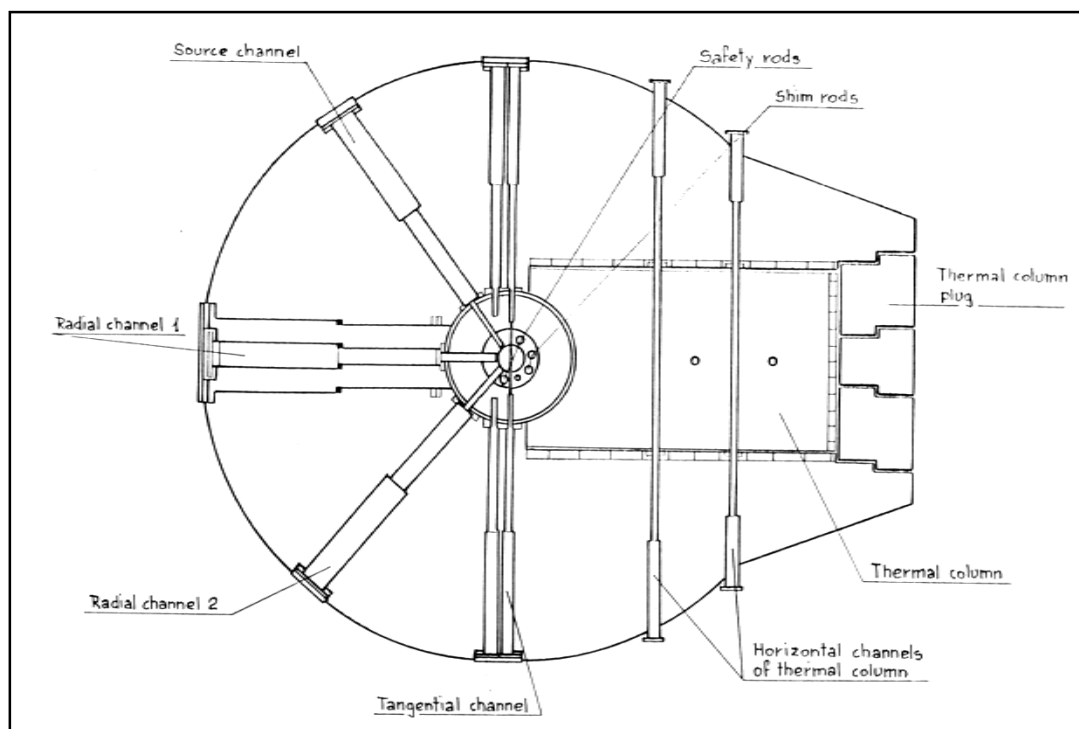


Figura 3: Sezione orizzontale del reattore Tapiro (ENEA-Casaccia). La posizione d'irraggiamento è al fondo del Radial channel 1.

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

Gruppo	R (cm)	0,25	1	1,65	2,15	3	4	5	5,895	6,445	7,05
	Emax (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+10	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	3,30E+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	2,09E+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 ²⁴¹Am (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 ²⁸Al ($T_{1/2} = 2.25$ m), ²⁴Mg ($T_{1/2} = 9.46$ m), ²⁴Na ($T_{1/2} = 15$ 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 ²⁴¹Am.

Nuclide	Attività (Bq) $T_{irr} = 1000h$	Attività (Bq) $T_{irr} = 5000h$	Attività (Bq) $T_{irr} = 10000h$
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 ²⁴¹Am 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.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-LP1-D.2b	0		12	25

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 mm^2 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 ^{241}Am è elevata e lo spettro è particolarmente complesso (vedi fig. 4 e tab. 5) [15].

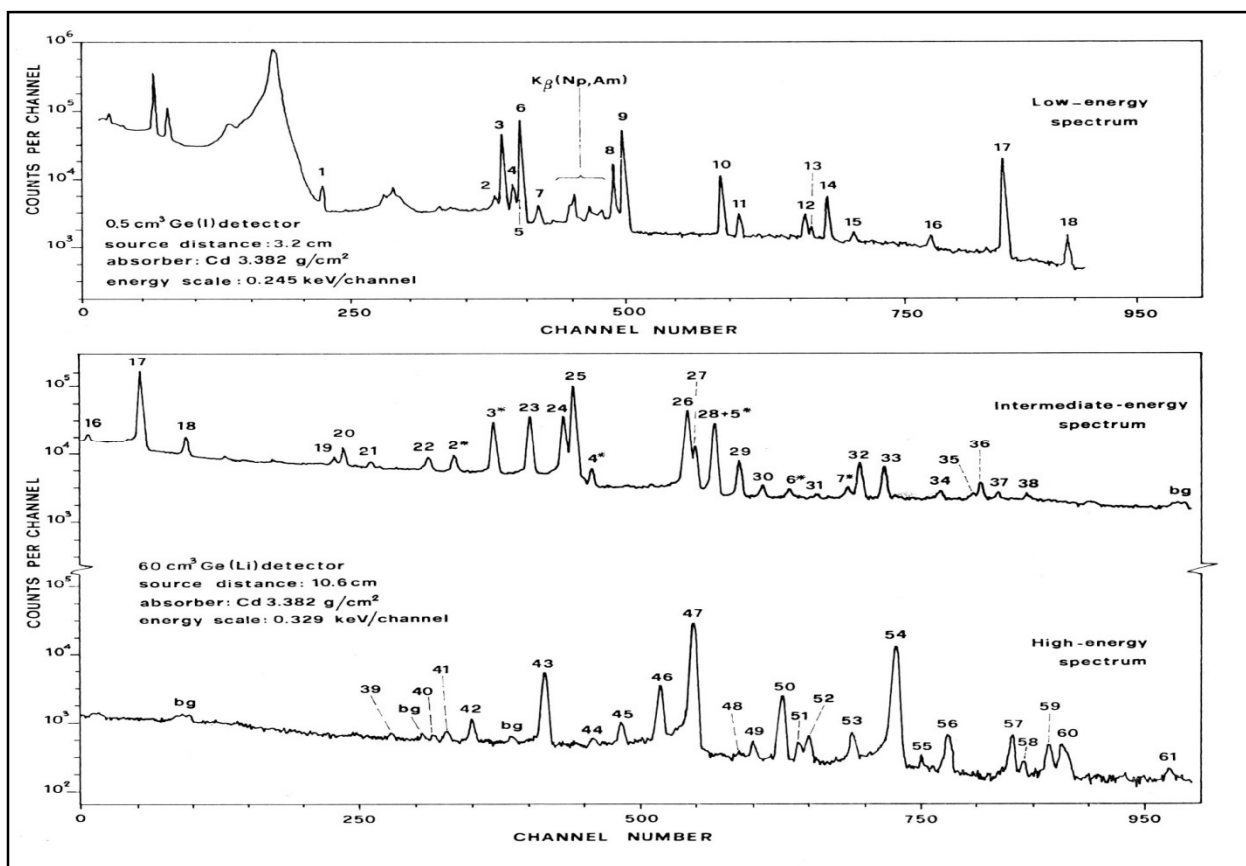


Figura 4: Spettri γ di ^{241}Am ottenuti con rivelatori al germanio.

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)
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):

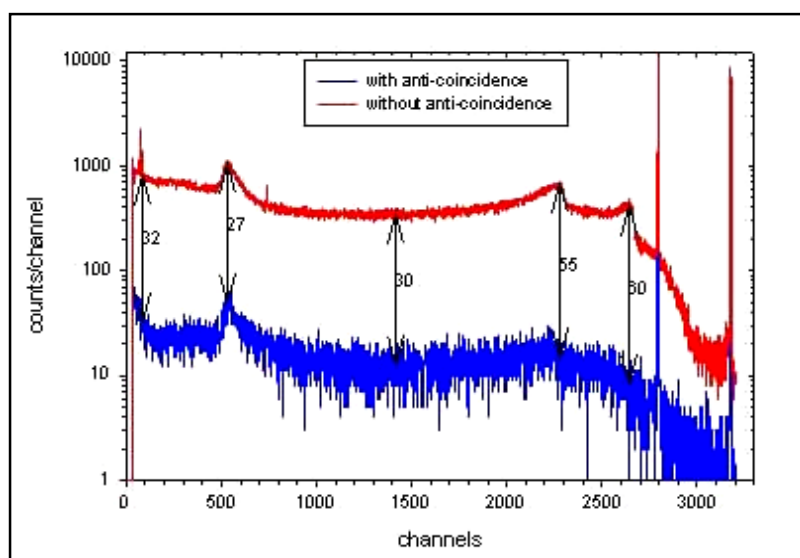


Figura 5: Riduzione della parte continua dello spettro gamma di ^{60}Co con sistema di anticoincidenza (schermo “Anti-Compton”) [17].

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.

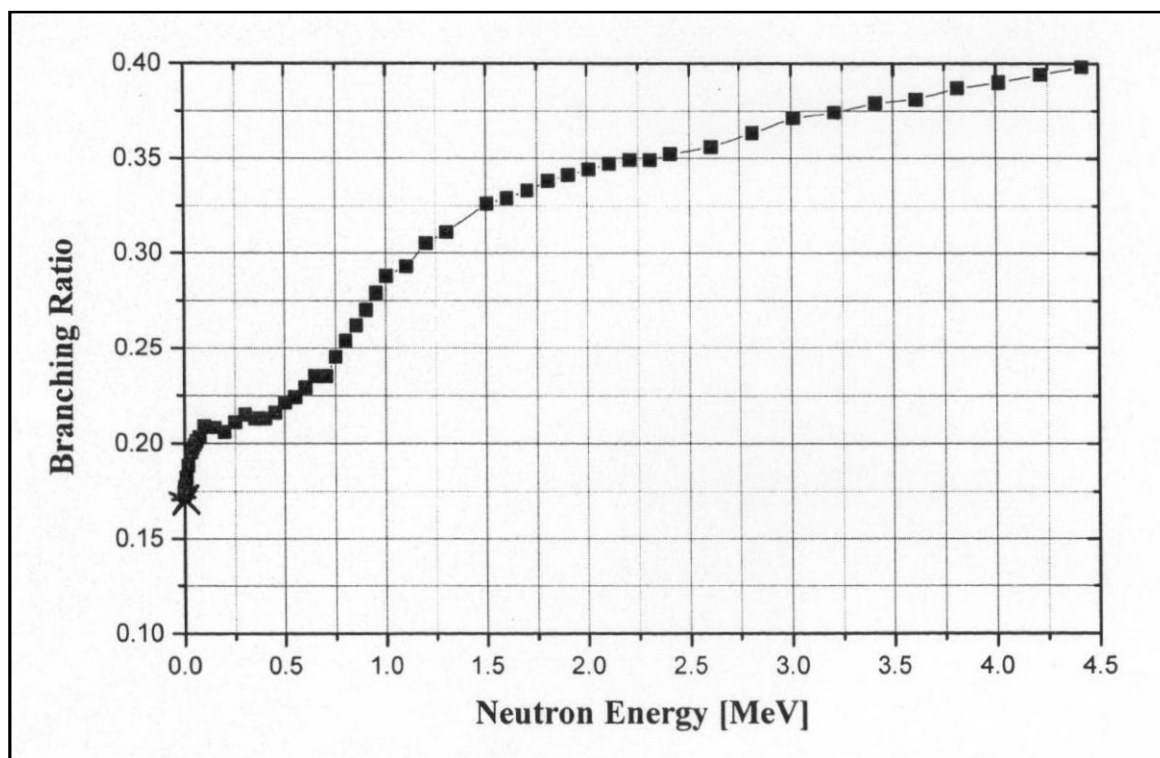


Figura 6: Probabilità di formazione dello stato meta stabile ^{242m}Am a seguito della reazione (n,γ) su ^{241}Am in funzione dell'energia dei neutroni [19].

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 $1.99 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) 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: ^{241}Am (94%) + ^{237}Np (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 ^{241}Am (4.364 mg) a fine irraggiamento (31 h) e dopo diversi tempi di raffreddamento.

Nuclide	Attività (Bq) $T_{\text{raff.}} = 0$	Attività (Bq) $T_{\text{raff.}} = 1 \text{ anno}$	Attività (Bq) $T_{\text{raff.}} = 3 \text{ anni}$	Attività (Bi) $T_{\text{rae.}} = 6 \text{ anni}$
^{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
$^{242\text{g}}\text{Am}$	7.47E+06	59.04	58.56	57.69
$^{242\text{m}}\text{Am}$	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 ^{241}Am : 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.

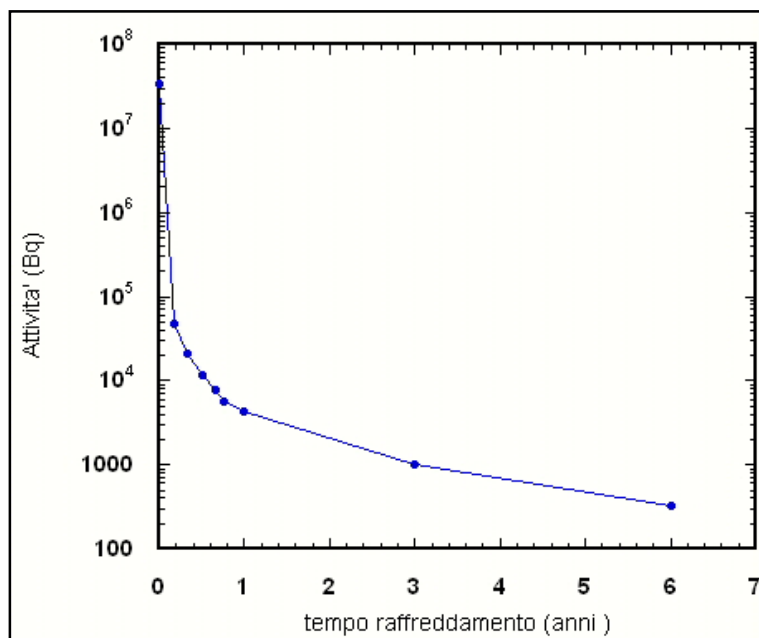
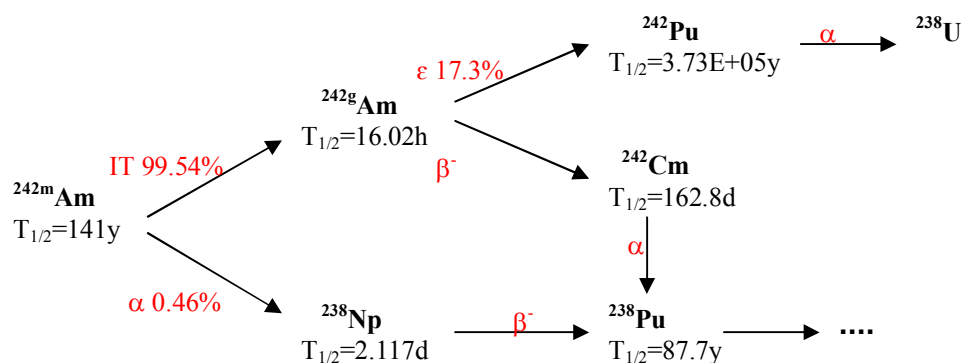



Figura 7: Variazione temporale dell'attività dei prodotti di fissione nel campione di ^{241}Am (4.364 mg).

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).



 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-LP1-D.2b	0		19	25

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

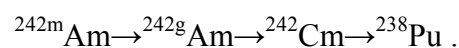
P = probabilità assoluta di emissione

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 $2 \times 10^{-4} \%$, 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 $^{242\text{m}}\text{Am}$, 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 $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($E = 49.35$ 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.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-LP1-D.2b	0		22	25

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.

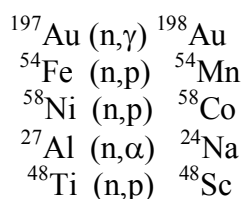
Come già detto questo tempo può essere consistentemente ridotto e la qualità della misura certamente migliorata, dotando il rivelatore, oltre allo schermo passivo, anche di uno schermo attivo "Anti-Compton".


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:



 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-LP1-D.2b	0		23	25

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	B road E nergy G ermanium
FEP	F ull E nergy P eak
HPGe	H igh P urity G ermanium
MCB	M onte- C arlo C ontinuous E nergy B urnup
MFA	M ultiple F oils A ctivation
OFHC	O xxygen- F ree H igh C onductivity

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

	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-LP1-D.2b	0		24	25

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

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2011-LP1-D.2b	0		25	25

- [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