

Результаты наработки калифорния-252 облучением берклия-249 в реакторе СМ-3 в матрицах различного состава

А.В. Куприянов, Е.Г. Романов, В.А. Тарасов, Р.Г. Абдуллоев, П.С. Буткалюк, Р.Н. Минвалиев, И.Р. Сулейманов, Д.А. Корнилов

АО «ГНЦ НИИАР»,

433510 Россия, Ульяновская область, г. Димитровград, Западное шоссе, 9

Реферат. Возможности высокопоточного реактора СМ-3 позволяют осуществлять наработку целого ряда востребованных в промышленности, медицине и науке изотопов трансплутониевых элементов (ТПЭ), в первую очередь ^{252}Cf для изготовления компактных источников нейтронов. Масштабное производство ^{252}Cf является длительным многоэтапным процессом, завершающим этапом которого является облучение мишеней с тяжелыми изотопами кюрия (ТИК). При этом одновременно с ^{252}Cf в мишенях накапливается ^{249}Bk , не представляющий ценности для практического применения. Однако при облучении как самого берклия, так и его дочернего продукта распада ^{249}Cf в реакторе можно получить дополнительные количества ^{252}Cf . В работе представлены результаты проведенных расчетных и экспериментальных исследований по облучению в реакторе СМ-3 мишеней, содержащих смесь изотопов ^{249}Bk и ^{249}Cf в матрицах из пеноалунда, кварца и меди, приведена информация об их основных нейтронно-физических и теплофизических характеристиках, дана оценка эффективности накопления целевых радионуклидов, приводятся сведения об основных этапах и результатах радиохимической переработки данных мишеней. Получено экспериментальное подтверждение расчетных оценок по выходу целевого ^{252}Cf и обоснован наиболее оптимальный материал матрицы мишени для облучения миллиграммовых количеств берклия и калифорния в реакторе СМ-3.

Ключевые слова: калифорний-252, берклиев-249, калифорний-249, реактор СМ-3, нейтронное облучение, наработка изотопов, нейтронно-физические характеристики, измерение активности, радиохимическая переработка.

Для цитирования: Куприянов А.В., Романов Е.Г., Тарасов В.А., Абдуллоев Р.Г., Буткалюк П.С., Минвалиев Р.Н., Сулейманов И.Р., Корнилов Д.А. Результаты наработки калифорния-252 облучением берклия-249 в реакторе СМ-3 в матрицах различного состава. *Известия вузов. Ядерная энергетика*. 2026;2:55–69. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2026.2.04>

Введение

Производство ^{252}Cf с использованием высокопоточного реактора СМ-3 является длительным, многоэтапным процессом, включающим в себя облучение граммовых масс плутония, америция или кюрия и промежуточное отделение образующихся осколков деления и изотопов трансплутониевых элементов [1].

Финальным этапом является облучение мишеней с кюрием и радиохимическое выделение из них ^{252}Cf ($T_{1/2} = 2,64$ года). Одновременно с ^{252}Cf в мишенях накапливается ^{249}Bk ($T_{1/2} = 330$ суток), который не представляет ценности для практических применений в качестве источника излучения.

При длительном хранении ^{249}Bk в значимых количествах образуется продукт его распада – ^{249}Cf ($T_{1/2} = 351$ лет). При этом смесь изотопов ^{249}Bk и ^{249}Cf может быть использована для получения наиболее ценного изотопа ТПЭ – ^{252}Cf (рис. 1). Максимум выхода ^{252}Cf при облучении такой смеси будет достигнут достаточно быстро [2, 3] по причине отсутствия «подпитки» ядрами кюрия, которые отсутствуют в стартовом материале.

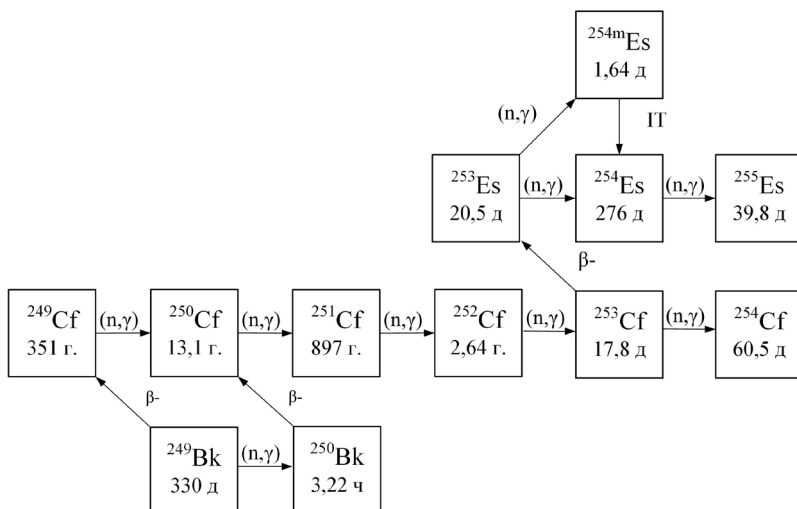


Рис. 1. Цепочка трансмутации изотопов при облучении берклия

Изотопы берклия и калифорния характеризуются высокими значениями сечений деления и радиационного захвата нейтронов, поэтому стартовый материал в мишени должен быть распределен в объеме химически инертной матрицы, слабо поглощающей нейтроны. Матрица должна обеспечивать снижение объемного энерговыделения в мишени, а также уменьшение эффекта самоэкранирования ядер и депрессии потока тепловых нейтронов, которые негативно влияют на скорость накопления ^{252}Cf .

В качестве материала матрицы в экспериментах было предложено использование пеноалунда (пористый оксид алюминия Al_2O_3), кварцевого порошка, прессованных таблеток из медного порошка. Кроме упомянутых физических критериев выбор материала определялся равномерностью распределения берклия по объему матрицы, а также полнотой радиохимического извлечения целевых радионуклидов после облучения.

В АО «ГНЦ НИИАР» успешно проведено четыре эксперимента по получению ^{252}Cf из облученных мишеней с миллиграммовыми количествами ^{249}Bk и ^{249}Cf . Помимо практической цели получения ^{252}Cf для изготовления нейтронных источников решались такие задачи, как отработка способа распределения стартового материала по объему сердечников мишеней, радиохимическое выделение целевых радионуклидов после облучения, экспериментальное подтверждение расчетных оценок по выходу ^{252}Cf .

Изготовление сердечников мишеней с берклием и калифорнием

Исходный радионуклид ^{249}Bk выделен при переработке облученных в реакторе СМ-3 кюриевых мишеней. Так как между очисткой берклия и последующей установкой мишеней с берклием для облучения в реактор проходит некоторый промежуток времени, то во всех экспериментах мишени содержали смесь изотопов ^{249}Bk и ^{249}Cf .

В первом эксперименте для изготовления композиции был дополнительно использован препарат ^{249}Cf , очищенный от ^{249}Bk . Содержание каждого из компонентов находили по разности между содержанием их в растворе до изготовления мишени и растворами, полученными при дезактивации используемой посуды и оснастки с поправкой на распад ^{249}Bk и накопление ^{249}Cf .

В первом эксперименте в качестве матрицы выбран пеноалунд. Из данного материала были изготовлены цилиндрические стержни диаметром 7,0 – 8,9 мм и высотой 23,5 – 44 мм. Стержни были отмыты кипячением HCl с концентрацией 8 М, последующей промывкой бидистиллированной водой, и высушены при температуре 250°C. Согласно результатам рентгенофазового анализа, пеноалундовые стержни состояли из $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ с возможными незначительными примесями других фаз оксида алюминия.

Раствор ^{249}Bk был разделен на две равные порции, а раствор ^{249}Cf – на шесть. Каждую порцию упаривали в кварцевом стакане, растворяли в заданном объеме 4 М HNO_3 и переносили в кварцевые пробирки. В эти пробирки помещали пеноалундовые сердечники для пропитки растворами берклия и калифорния. Затем пробирки с сердечниками высушивали на электроплитке при температуре 90°C и прокаливали в шахтной печи при температуре 600°C. При расчете точной массы $^{249}\text{Bk}/^{249}\text{Cf}$ в мишенях учитывали активность препарата, оставшуюся на стенках пробирок после прокаливания. В результате для облучения были подготовлены два пеноалундовых стержня, содержащих 0,94 мг ^{249}Bk и 1,09 мг ^{249}Cf , и шесть пеноалундовых стержней, содержащих в сумме 14,3 мг ^{249}Cf .

Для второго эксперимента была использована смесь оксидов берклия и калифорния с кварцевым порошком. Подобная по составу смесь на основе оксида европия используется для получения ^{153}Gd из Eu_2O_3 . Смесь получили нанесением азотнокислого раствора нитратов берклия и калифорния на кварцевый порошок с размером частиц 100 – 160 мкм массой 2,0 г. Смесь высушивалась под лампой и прокаливалась в течение 8 ч при температуре 800°C. Равномерность распределения компонентов обеспечивалась механическим перемешиванием смеси до и после прокаливания. Прокаленная смесь была поровну разделена между двумя негерметичными капсулами из кварцевого стекла. Суммарное количество берклия в обеих капсулах за вычетом потерь на всех стадиях процесса составило 0,93 мг, а калифорния – 0,86 мг. Согласно предварительным экспериментам, проведенным на имитаторах, насыпная плотность

полученного порошка составила $\sim 1,1$ г/см³. Капсулы помещались в реакторные мишени из нержавеющей стали и герметизировались сваркой.

В третьем эксперименте на облучение была поставлена одна реакторная мишень, содержащая 0,965 мг ²⁴⁹Bk, 0,598 мг ²⁴⁹Cf с 0,95 г кварцевого порошка.

В четвертом эксперименте в качестве матрицы использовалась металлическая медь. Смесь нитратов ²⁴⁹Bk и ²⁴⁹Cf переводилась в формиат упариванием с муравьиной кислотой. Полученный раствор формиатов смешивался с медным порошком ПМС-1 массой 15,482 г и высушивался на электроплитке. Полученная смесь использовалась для изготовления восьми таблеток с диаметром 7,6 мм и высотой $7,1 \pm 0,5$ мм. Таблетки прокаливались в токе аргона при температуре 600°C в течение 2 ч. Средняя плотность таблеток после прокаливания составила $6,0 \pm 0,4$ г/см³. Таблетки помещались в реакторные мишени из нержавеющей стали и герметизировались сваркой. За вычетом потерь при изготовлении содержание ²⁴⁹Bk и ²⁴⁹Cf в мишени составило 1,2 мг и 0,27 мг соответственно.

Расчет нейтронно-физических, теплофизических характеристик мишеней и трансмутации ядер

Традиционно облучение мишеней с ТПЭ проводится в реакторе СМ-3 [1]:

- в ячейках центральной нейтронной ловушки, где достигается максимальная плотность потока тепловых и резонансных нейтронов;
- в топливной зоне, для которой характерен жесткий спектр с низкой плотностью потока тепловых нейтронов и сравнимой с ловушкой плотностью потока резонансных нейтронов;
- в ближних к топливной зоне каналах бериллиевого отражателя, где плотность потока тепловых нейтронов имеет промежуточное между ловушкой и топливной зоной значение, а плотность резонансных нейтронов наименьшая среди рассматриваемых вариантов.

Исходными данными при проведении нейтронно-физических расчетов и трансмутации являлись сведения о загрузке ТВС и облучательных устройств в активную зону реактора, конструкция мишеней, место облучения в реакторе, характеристики стартового материала.

Расчеты нейтронно-физических характеристик, таких как плотность потока нейтронов, температура нейтронного газа, энерговыделение в облучаемых материалах, выполнены с помощью программы MCU [4], которая реализует численное решение уравнения переноса нейтронов методом Монте-Карло на основании оцененных ядерных данных для систем с произвольной трехмерной геометрией.

Плотность потока нейтронов регистрировалась в трех группах: тепловой ($E < 0,5$ эВ), промежуточной (0,5 эВ – 0,1 МэВ), быстрой (0,1 – 20 МэВ). Температура нейтронного газа определялась исходя из скорости реакции (n, γ) на ядрах ⁵⁹Со в тепловой группе.

Результаты расчетов нейтронно-физических характеристик представлены в табл. 1 (значения нормированы на мощность реактора 100 МВт).

Расчет трансмутации проводился с использованием программы ChainSolver [5]. Коэффициенты резонансного самоэкранирования ядер [6] (отношение значения эффективного резонансного интеграла к интегралу при бесконечном разбавлении

Таблица 1

Нейтронно-физические характеристики ячеек облучения

Место облучения	Групповая плотность потока нейтронов, $\times 10^{14} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$			$T_{н.г.}$ К
	0 – 0,5 эВ	0,5 эВ – 0,1 МэВ*	0,1 – 20 МэВ	
Нейтронная ловушка	18,0	1,35	12,8	460
Топливная зона	1,76	1,30	20,4	1000
Канал отражателя	5,88	0,49	4,57	460

* на единичный интервал летаргии

поглотителя) рассчитывались методом промежуточного резонанса. Вследствие малой концентрации ядер ТПЭ в объеме сердечников мишеней данный эффект незначителен – коэффициенты самоэкранирования больше 0,98 для любого изотопа цепочки (рис. 1). По этой же причине изменение групповых плотностей потока нейтронов при выгорании стартовой композиции пренебрежимо мало и не учитывалось.

В таблице 2 приведены ядерно-физические константы нуклидов из цепочки превращений (см. рис. 1). Для корректного вычисления скоростей ядерных реакций в тепловой области энергий большое значение имеет учет g -фактора [7] (коэффициента, характеризующего отклонение энергетической зависимости сечения захвата нейтрона ядром от закона $(1/v)$, где v – скорость нейтрона). В таблице 2 значения g -фактора приведены для температур нейтронного газа, характерных для ячеек центральной нейтронной ловушки, отражателя и топливной зоны. Значение g -фактора вычислялось по формуле

$$g(T) = \frac{\int_0^{0.5\text{эВ}} \sigma(E) \cdot M(E) \cdot dE}{\sigma_{0.0253} \cdot \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \sqrt{\frac{293.6}{T}}}$$

Таблица 2

Ядерно-физические константы изотопов цепочки трансмутации из библиотеки ENDF/B-VIII.0 [8]

Изотоп	σ_c , барн	g -фактор		R_{Ic} , барн	σ_f , барн	R_{If} , барн
		460 К	1000 К			
^{249}Bk	711	3,24	8,81	1132	3,97	6,26
^{250}Bk	780	1,01	1,03	492	980	619
^{249}Cf	506	0,92	0,90	695	1673	2209
^{250}Cf	2018	0,91	1,14	11905	112	128
^{251}Cf	2864	0,99	0,97	520	4939	1029
^{252}Cf	20,7	0,99	0,93	44,5	33	100

В таблице 2: σ_c , R_{Ic} – сечение радиационного захвата тепловых нейтронов и резонансный интеграл захвата нейтрона ядром соответственно; σ_f , R_{If} – сечение деления тепловыми нейтронами и резонансный интеграл деления ядра соответственно.

где $M(E)$ – спектр Максвелла, $\sigma_{0,0253}$ – сечение поглощения нейтронов в тепловой точке (0,0253 эВ).

Следует отметить, что для ядер ^{249}Bk зависимость сечения радиационного захвата нейтронов от энергии в тепловой области существенно отличается от закона $1/v$ в виду наличия резонанса с энергией $E = 0,195$ эВ, поэтому значение g -фактора много больше единицы. Это обстоятельство учтено при построении модели трансмутации ядер изучаемой цепочки.

Расчетные зависимости выхода ^{252}Cf при облучении ^{249}Bk и ^{249}Cf от времени для различных позиций облучения приведены на рис. 2, 3.

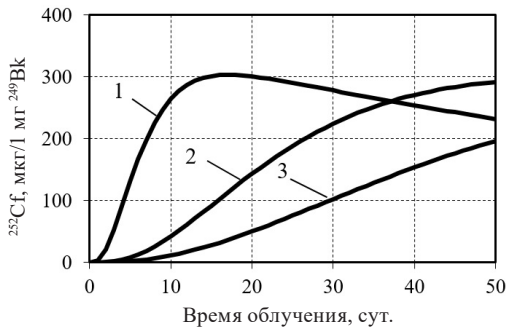


Рис. 2. Выход ^{252}Cf при облучении стартового ^{249}Bk : 1 – в ячейке центральной ловушки; 2 – в канале отражателя; 3 – в топливной зоне

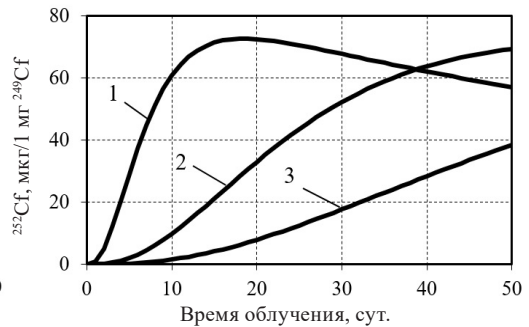


Рис. 3. Выход ^{252}Cf при облучении стартового ^{249}Cf : 1 – в ячейке центральной ловушки; 2 – в канале отражателя; 3 – в топливной зоне

Из представленных данных (см. рис. 2, 3) следует, что в ячейках центральной нейтронной ловушки реализуется наибольшая скорость накопления ^{252}Cf с достижением максимума на ~15-е сутки облучения. Удельный выход ^{252}Cf при облучении ^{249}Bk более чем в четыре раза превышает выход при облучении ^{249}Cf . Это объясняется соотношением абсолютной скорости убыли ^{249}Cf за счет деления (скорость ядерной реакции деления, умноженная на ядерную концентрацию) при облучении берклия и калифорния. При облучении берклия в начальный момент ядра ^{249}Cf вообще отсутствуют, поэтому абсолютная скорость их убыли за счет деления будет относительно невелика на протяжении всего цикла облучения. При облучении калифорния в начальный момент абсолютная скорость убыли ^{249}Cf максимальна и останется существенной на протяжении всего цикла облучения. Таким образом, использование для облучения берклия позволяет «проскочить» ^{249}Cf на пути к образованию целевого ^{252}Cf , потеряв относительно небольшое количество ядер.

Энерговыделение в сердечнике мишени определяется изменением количества интенсивно делящихся радионуклидов ^{249}Cf и ^{251}Cf при облучении. На рисунке 4 показано удельное (на 1 мг стартового ^{249}Bk и ^{249}Cf) энерговыделение при облучении в ячейке центральной нейтронной ловушки.

Максимум энерговыделения при облучении берклия наступает на пяте – шестые сутки и обусловлен накоплением ^{251}Cf , в то время как при облучении ^{249}Cf максимум наступает в начальный момент.

Теплогидравлический расчет мишеней с берклием и калифорнием, установленных в ячейки центральной нейтронной ловушки реактора SM-3, проводился в трехмерной

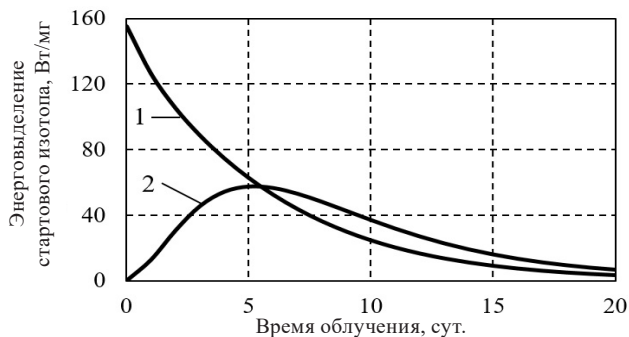


Рис. 4. Энерговыделение в мишени, обусловленное делением ядер ТПЭ: 1 – на 1 мг стартового ^{249}Cf ; 2 – на 1 мг стартового ^{249}Bk

геометрии с использованием расчетного пакета SolidWorks с гидрогазодинамическим модулем FlowSimulation [9]. Согласно результатам расчета, максимальная температура на поверхности мишеней составила $\sim 89^\circ\text{C}$, что ниже температуры насыщения воды первого контура ($\sim 260^\circ\text{C}$). Следовательно, теплоотдача от поверхности мишеней происходит без поверхностного кипения. Максимальная температура центра сердечника реализуется при облучении мишеней с пеноалундовыми стержнями и составляет $\sim 918^\circ\text{C}$, что меньше температуры плавления материала сердечника (2040°C).

Методы измерения активности радионуклидов

Измерение активности радионуклида ^{249}Bk (низкоэнергетического β -излучателя) проводили с использованием жидкостно-сцинтилляционного спектрометра бета-излучения «Quantulus 1220» (Perkin Elmer Inc., США). Источники для измерения изготавливались путем внесения во флакон 10 мл сцинтиллятора и аликвоты измеряемого раствора объемом 20 – 50 мкл. Эффективность регистрации бета-излучения для данного радиометра постоянна для широкого диапазона энергий, и для ^{249}Bk определялась по эффективности регистрации ^{14}C . Расширенная неопределенность измерений не превышает 10% для доверительной вероятности $P = 0,95$.

Измерение активности ^{249}Cf и гамма-излучающих примесей проводили с использованием гамма-спектрометра с детектором на основе Ge-Li ДГДК-150 («Гринстар», г. Москва) и гамма-спектрометра для измерений рентгеновского и гамма-излучений МКГБ-01 РАДЭК с детектором на основе особо чистого германия (ООО «НТЦ РАДЭК», г. Санкт-Петербург). Источники для измерения представляли собой растворы объемом 1,00 мл в стеклянных пробирках диаметром 12 мм. Градуировка прибора проводилась по образцовым растворам ^{152}Eu . Расширенная неопределенность измерений не превышает 10 % для доверительной вероятности $p = 0,95$.

Измерение активности ^{252}Cf в растворах, а также альфа-излучающих примесей проводили с использованием альфа-спектрометра на основе кремниевых детекторов (ОАО «ИФТП», г. Дубна, Россия). Образцы (источники) для измерения активности альфа-излучения изготавливались нанесением 10 – 50 мкл анализируемого раствора на подложку из нержавеющей стали с последующим упариванием и прокалкой на электроплитке с открытой спиралью. Для градуировки спектрометров использовали

образцовые спектрометрические альфа-источники (ОСАИ). Расширенная неопределенность измерений не превышает 12% для доверительной вероятности $p = 0,95$.

Определение примесных элементов в растворах проводили методом атомно-эмиссионного спектрального анализа на установке с дуговым источником возбуждения спектров «Везувий-3» и спектрометрами СТЭ-1 и PGS-2, оснащенными многоканальными анализаторами эмиссионных спектров (МАЭС).

Экспериментальное облучение мишеней

Экспериментальное облучение мишеней с берклием и калифорнием проводилось в ячейках нейтронной ловушки реактора SM-3; сводные данные представлены в табл. 3.

Все эксперименты по облучению мишеней прошли штатно, плавления сердечника мишеней не отмечено, что согласуется с результатами теплофизических расчетов. Отметим хорошее согласие расчетных оценок выхода ^{252}Cf с экспериментальными значениями.

Таблица 3

Характеристики экспериментальных мишеней

№ эксп.	Стартовая композиция	Материал матрицы	Длительность облучения, эффективные сутки	Выход ^{252}Cf (расч.), мг	Выход ^{252}Cf (эксп.), мг
1	$^{249}\text{Bk} - 0,94$ мг $^{249}\text{Cf} - 1,09$ мг	Пеноалунд	14,2	0,343	$0,308 \pm 0,037$
	$^{249}\text{Cf} - 14,32$ мг	Пеноалунд	14,2	0,943	$0,918 \pm 0,110$
2	$^{249}\text{Bk} - 0,930$ мг $^{249}\text{Cf} - 0,860$ мг	Кварц	19,6	0,345	$0,366 \pm 0,044$
3	$^{249}\text{Bk} - 0,965$ мг $^{249}\text{Cf} - 0,598$ мг	Кварц	19,5	0,277	$0,210 \pm 0,025$
4	$^{249}\text{Bk} - 1,2$ мг $^{249}\text{Cf} - 0,27$ мг	Медь	20,1	0,384	$0,360 \pm 0,043$

Примечание: под термином «эффективные сутки» понимается длительность работы реактора, приведенная к номинальной мощности 100 МВт.

Радиохимическая переработка облученных мишеней

Все экспериментальные мишени после облучения в реакторе выдерживались 14 – 28 сут для распада короткоживущих продуктов деления. Вскрытие мишеней проводилось в радиационно-защитной камере с последующим растворением облученного материала в 4 М HNO_3 .

Сердечники из пеноалунда нерастворимы в азотной кислоте, поэтому после их обработки азотной кислотой для оценки потерь ^{252}Cf проводилось измерение потока нейтронов от сердечников на установке УНИ-1. Измерения проводили через радиационно-защитное стекло «горячих» камер методом компаратора в приближении точечной геометрии, сравнивая скорость счета от исследуемого источника и контрольного источника в одной геометрии. Расширенная неопределенность измерений не превышает 10% для

доверительной вероятности $p = 0,95$. При измерении вводили поправки на «мертвое» время и распад ^{252}Cf в контрольном источнике за время хранения.

Также проводились измерения потока нейтронов от аликвоты раствора облученного материала на установке УНИ-4. Из полученных результатов потока нейтронов оценивалась масса ^{252}Cf . Согласно результатам измерения, доля извлеченного ^{252}Cf для мишеней на основе ^{249}Bk и ^{249}Cf составила 74 и 94% соответственно.

Растворы облученного материала содержали значительные концентрации солей алюминия, осколки деления и другие примеси. Для очистки калифорния от солей алюминия использовали соосаждение $\text{Cf}(\text{OH})_3$ с $\text{Ni}(\text{OH})_2$ из растворов NaOH с концентрацией 0,3 М. Помимо алюминия данная операция позволила очистить препарат от радиоактивных изотопов йода.

Очистка калифорния от осколков деления проводилась методом экстракционной хроматографии на колонке с сорбентом LnResin. Сорбция калифорния и промывка колонки проводилась 0,2 М HCl , а десорбция проводилась 1,5 М HNO_3 . Для мишени с облученным ^{249}Cf после первого цикла хроматографической очистки была выделена только часть ^{252}Cf в связи с высокой концентрацией примесей. После дополнительно проведенной очистки ^{252}Cf с использованием анионообменной смолы Bio-Rad AG 1X8 в 8М HCl была выполнена повторная очистка калифорния на колонке LnResin. Общая схема выделения ^{252}Cf из облученных мишеней показана на рис. 5.

Данная схема очистки позволила получить препарат $\text{Cf}(\text{NO}_3)_3$, очищенный от всех радиоактивных примесей за исключением ^{156}Eu ($T_{1/2} = 15,2$ сут) и ^{253}Es ($T_{1/2} = 20,5$ сут),

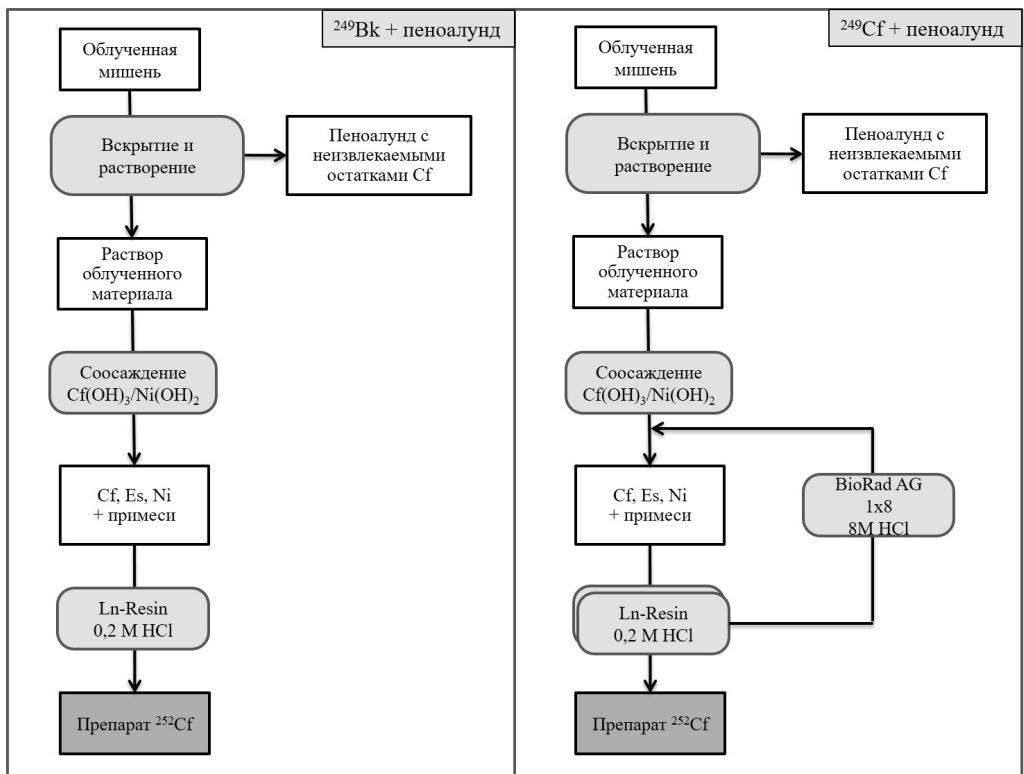


Рис. 5. Схема выделения ^{252}Cf из облученных мишеней с матрицей из пеноалунда

который постоянно образуется из ^{253}Cf ($T_{1/2} = 17,8$ сут). Однако данные примеси не мешают применению ^{252}Cf для изготовления нейтронных источников.

При радиохимической переработке мишеней с кварцевым наполнителем также существует проблема неполного извлечения калифорния при обработке облученного материала азотной кислотой. Согласно данным, полученным при измерении потока нейтронов, содержание ^{252}Cf в кварцевом порошке после растворения составило ~15% от общего количества (результат оценочный из-за отличия геометрии измеряемого объекта от контрольного источника). Для доизвлечения калифорния кварцевый порошок был растворен в 50 % HF при кипячении, а полученный раствор упарен досуха. Сухой остаток фторидов был обработан 16 М HNO_3 при нагревании для отгонки HF. Затем содержащие калифорний растворы были объединены и упарены. Выделение калифорния проводилось методом катионообменной хроматографии на колонке, содержащей 15 см³ катионита Bio-Rad AG 50W-X8 (200 – 400 меш в NH_4^+ форме). Сорбция калифорния осуществлялась из 50 мл 0,1 М HNO_3 , а элюирование компонентов – 0,1 М раствором α -гидроксиизобутирата аммония с pH = 5,0. Режим хроматографического процесса был выбран с учетом выполненных ранее исследований [10], поскольку в указанных условиях обеспечивается эффективная очистка калифорния от примесей радионуклидов тербия, европия и кюрия. Содержащая калифорний фракция элюата была подкислена азотной кислотой. Очистка калифорния от нерадиоактивных солевых компонентов проводилась путем сорбции на второй колонке с 10 см³ катионита Bio-Rad AG 50W-X8 (100 – 200 меш в H^+ форме), промывки 1 М HNO_3 и элюирования 8 М HNO_3 . Полученный раствор $^{252}\text{Cf}(\text{NO}_3)_3$ содержал 0,36 мг ^{252}Cf . С учетом потерь при растворении и очистке экспериментальный выход ^{252}Cf оценивается в 0,366 мг, что в пределах погрешности согласуется с расчетными данными.

В эксперименте № 3 переработка облученных мишеней была выполнена аналогично, за исключением того, что потери при очистке были несколько выше, поэтому для расчетов выходов было использовано содержание ^{252}Cf в исходном растворе до очистки (0,21 мг).

В отличие от кварцевого порошка и пеноалунда при растворении медных таблеток (в эксперименте № 4) калифорний переходит в раствор количественно, что облегчает оценку выхода ^{252}Cf . Содержание калифорния в полученном растворе составило 0,36 мг на момент окончания облучения.

Одной из задач данного эксперимента была оценка степени выгорания берклия. Радионуклид ^{249}Bk является низкоэнергетическим бета-излучателем и его активность невозможно корректно измерить в присутствии смеси продуктов деления. Поэтому было решено проводить анализ с предварительным химическим выделением ^{249}Bk из аликвоты раствора облученного материала (400 мкл). На первой стадии производилась очистка берклия от $^{141,144}\text{Ce}$ на колонке с анионообменной смолой Bio-Rad AG 1X8 из раствора 8 М HNO_3 + 0,1 М NaBrO_3 . На второй стадии ^{249}Bk был очищен от других ТПЭ и продуктов деления на колонке с сорбентом LnResin. Сорбция берклия проводилась из раствора 6 М HNO_3 + 0,1 М NaBrO_3 , а элюирование 4 М HNO_3 + 0,1 М N_2H_4 . Очищенный таким образом берклий все еще содержал некоторое количество радиоактивных примесей (^{59}Fe , ^{95}Nb , $^{103,106}\text{Ru}$, $^{141,144}\text{Ce}$), которые могли повлиять на результаты измерений активности берклия по собственному бета-излучению, поэтому его активность была определена по скорости накопления дочернего радионуклида ^{249}Cf (рис. 6).

Результаты наработки калифорния-252 облучением берклия-249 в реакторе СМ-3
в матрицах различного состава

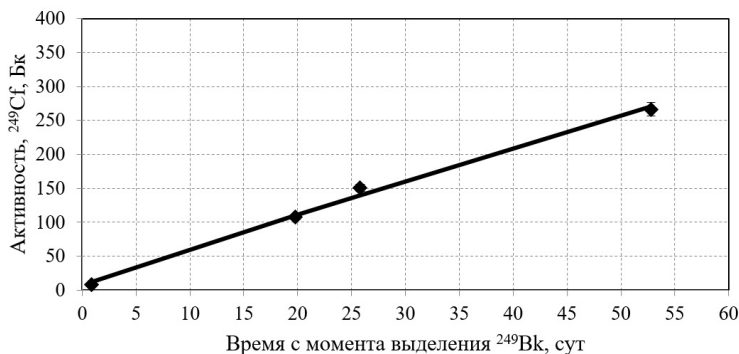


Рис. 6. Активность ^{249}Cf в источнике, содержащем ^{249}Bk в зависимости от времени выдержки

Полученные значения были аппроксимированы функцией:

$$A(\text{Cf}) = A_0(\text{Cf}) + \frac{A_0(\text{Bk}) \times \lambda(\text{Cf})}{\lambda(\text{Bk})} \times [1 - \exp(-\lambda(\text{Bk}) \times t)],$$

где t – время с момента разделения берклия и калифорния, с; $A(\text{Cf})$ – активность ^{249}Cf в момент времени t , Бк; $A_0(\text{Cf})$ – исходная активность ^{249}Cf , Бк; $A_0(\text{Bk})$ – исходная активность ^{249}Bk , Бк; $\lambda(\text{Cf})$ – постоянная распада ^{249}Cf , с^{-1} ; $\lambda(\text{Bk})$ – постоянная распада ^{249}Bk , с^{-1} .

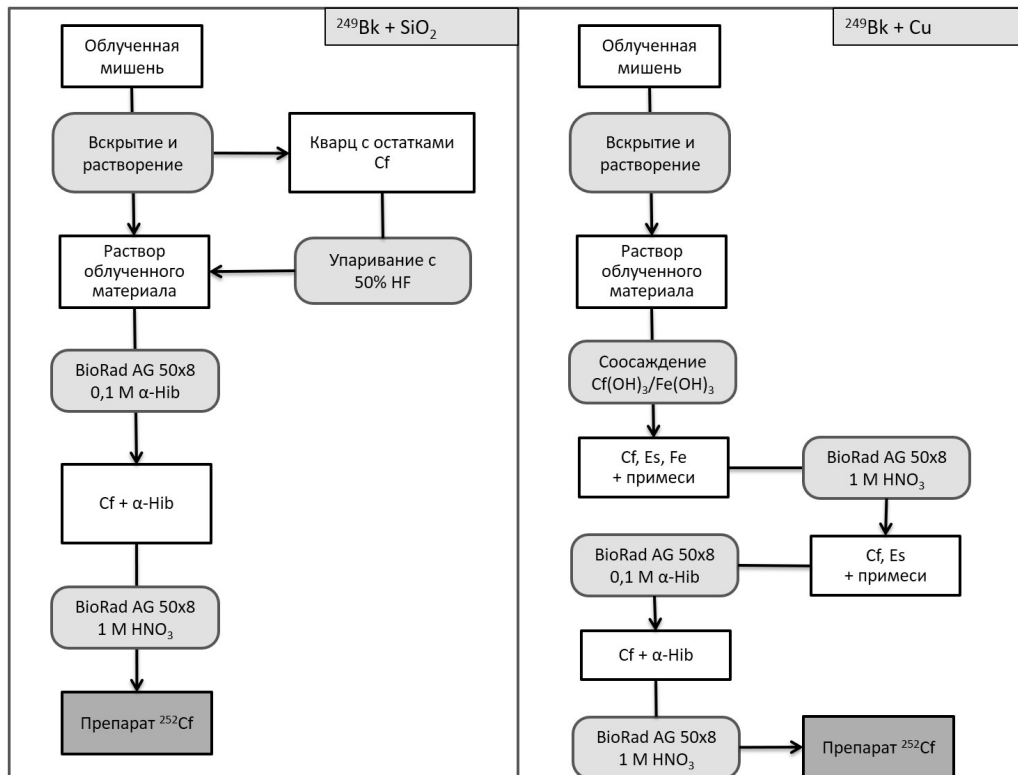
Поиск начальных параметров уравнения $A_0(\text{Cf})$ и $A_0(\text{Bk})$ был выполнен нелинейным методом обобщенного понижающего градиента в программе MSExcel. Вычисленная таким образом активность ^{249}Bk в облученной мишени составила $6,89 \cdot 10^8$ Бк, что соответствует степени выгорания $\sim 99,3\%$ (расчетная степень выгорания берклия $99,6\%$).

Из основного раствора проводили соосаждение гидроксида калифорния с гидроксидом железа под действием 12 M NH_3 . При этом медь образует аммиачные комплексы, которые остаются в растворе и не мешают последующей катионообменной очистке калифорния. Калифорний отделяли от солей железа на колонке, содержащей 20 см^3 катионита Bio-Rad AG 50W-X8 ($100 - 200$ меш в H^+ форме). Сорбцию калифорния и элюирование солей железа проводили из 1 M HNO_3 , а элюирование калифорния – 8 M HNO_3 . Затем проводили очистку калифорния от оставшихся примесей методом катионообменной хроматографии в присутствии α -гидроксиизобутирата аммония по методике, аналогичной той, что использовалась в экспериментах № 2 и № 3. Общая схема радиохимической переработки облученных мишеней с матрицами из кварца и медного порошка представлена на рис. 7.

Заключение

Представлены результаты облучения в реакторе СМ-3 смеси ^{249}Bk и ^{249}Cf в мишенях с тремя типами матриц: оксид алюминия (пеноалунд), кварц и металлическая медь. Разработана расчетная модель трансмутации ядер при облучении берклия и калифорния, корректно описывающая кинетику процесса. Показано, что при облучении

Results of Californium-252 Production by Berkelium-249 Irradiation in the SM-3 Reactor in Matrices of Various Composition

Рис. 7. Схема выделения ^{252}Cf из облученных мишеней с матрицами из кварцевого порошка и меди

мишеней с берклием и калифорнием максимум выхода ^{252}Cf достигается примерно за 15 суток облучения (две кампании реактора СМ-3) и составляет $\sim 0,3$ мг на 1 мг ^{249}Bk и $\sim 0,06$ мг на 1 мг ^{249}Cf соответственно.

Первые два типа матриц (пеноалунд и кварцевый порошок) характеризуются низкими коэффициентами теплопроводности и, соответственно, высокими значениями температур сердечника. Кроме того при их использовании наблюдается неполное извлечение калифорния раствором азотной кислоты. В случае кварцевого порошка проблема может быть решена использованием для растворения облученного материала 50 % HF. Однако при организации постоянного производства использование плавиковой кислоты может привести к повреждению дорогостоящего радиационно-защитного оборудования (в частности, радиационно-защитных стекол).

При использовании медной матрицы калифорний полностью переходит в раствор, однако высокая концентрация солей меди в полученном растворе несколько усложняет выделение и очистку калифорния.

По совокупности физико-химических критериев наиболее приемлемой для облучения миллиграммовых количеств смеси берклия и калифорния является медная матрица.

Литература

1. Куприянов А.В., Романов Е.Г., Тарасов В.А. Критерии оптимизации и планирование масштабного реакторного производства. *Известия Самарского научного центра Российской академии наук*. 2013;15(4(5)):1073–1077. URL: http://www.ssc.smr.ru/media/journals/izvestia/2013/2013_4_1073_1077.pdf (дата обращения 17.02.2026).

2. Клинов А.В., Мамелин А.В., Топоров Ю.Г. Влияние параметров нейтронного поля на выход ^{252}Cf . *Атомная энергия*. 1985;58(4):284–286. URL: https://elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t58-4_1985/p284/ (дата обращения 17.02.2026).
3. Топоров Ю.Г., Тарасов В.А., Куприянов А.В., Ротманов К.В., Буткалюк П.С., Кузнецов Р.А., Абдуллоев Р.Г. Экспресс-метод получения калифорния-252 облучением берклия. Сборник трудов АО «ГНЦ НИИАР». Димитровград, 2018, вып. 1, с. 60–68. EDN: YVRQMG. URL: https://www.elibrary.ru/download/elibrary_32784383_82861001.pdf (дата обращения 17.02.2026).
4. Абагян Л.П., Алексеев Н.И., Глушков А.Е., Гуревич М.И. и др. Программа MCU-RFFI/A с библиотекой констант DLC/MCUDAT-1.0. *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика ядерных реакторов*. 2001;3:50–55.
5. Романов Е.Г., Тарасов В.А. Программа ChainSolver. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2022683765, Российская Федерация, дата заявления 21.11.2022, дата опубликования 08.12.2022.
6. Дреснер Л. Резонансное поглощение в ядерных реакторах. Москва, Госатомиздат, 1962, 135 с.
7. Бекурц К., Виртц К. Нейтронная физика. Москва, Атомиздат, 1968, 105 с.
8. Brown D.A. et al. ENDF/B-VIII.0: The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data. *Nuclear Data Sheets*. 2018;148:1–142. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2018.02.001>
9. Алямовский А.А. SolidWorks/COSMOSWorks. Инженерный анализ методом конечных элементов. Москва, ДМК, 2004, 786 с.
10. Андреев О.И., Зотов Э.А., Баранов А.Ю., Куприянова Н.Т. Исследование закономерностей ионообменного поведения калифорния, эйнштейния и фермия в присутствии α -оксиизомаасляной кислоты. Сборник трудов ГНЦ НИИАР. Димитровград 2004, вып. 4, с. 81–88. URL: <https://niiar.ru/publishing/collected-works/archive/item/7037> (дата обращения 17.02.2026).

Поступила в редакцию 01.10.2025

После доработки 15.04.2026

Принята к опубликованию 12.05.2026

Авторы

Куприянов Алексей Владимирович, старший научный сотрудник лаборатории реакторных методов получения радионуклидов отделения радионуклидных источников и препаратов,

E-mail: kupr-av@orip.niiar.ru

Романов Евгений Геннадьевич, начальник лаборатории реакторных методов получения радионуклидов отделения радионуклидных источников и препаратов, к.т.н.,

E-mail: romanov@orip.niiar.ru

Тарасов Валерий Анатольевич, заместитель начальника отделения радионуклидных источников и препаратов,

E-mail: tarasov@orip.niiar.ru

Абдуллоев Рафаэль Геннадьевич, начальник группы аппаратного исполнения технологий отделения радионуклидных источников и препаратов,

E-mail: orip-abdullov@pub.niiar.ru

Буткалюк Павел Сергеевич, старший научный сотрудник радиохимической лаборатории отделения радионуклидных источников и препаратов,

E-mail: pcbutkalyuk@niiar.ru

Минвалиев Рамиль Наильевич, начальник аналитического управления отделения радионуклидных источников и препаратов, к.ф.-м.н.,

E-mail: orip-mpn@orip.niia.ru

Сулейманов Ильдар Радикович, младший научный сотрудник физико-технической лаборатории отделения «Реакторный исследовательский комплекс»,

E-mail: rik-sir@pub.niia.ru

Корнилов Дмитрий Александрович, ученый секретарь, к.ф.-м.н.,

E-mail: kornilovda@niia.ru

UDC 621.039.8.002

Results of Californium-252 Production by Berkelium-249 Irradiation in the SM-3 Reactor in Matrices of Various Composition

Kupriyanov A.V., Romanov E.G., Tarasov V.A., Abdullov R.G., Butkalyuk P.S., Minvaliev R.N., Suleimanov I.R., Kornilov D.A.

RIAR JSC,

9 Zapadnoye Sh., 433510 Dimitrovgrad, Ulyanovsk reg., Russia

Abstract

The capabilities of the high-flux SM-3 reactor allow production of a large number of transplutonium isotopes for industry, medicine and science. The most valuable isotope is californium-252 for compact neutron sources. The large-scale production of californium-252 is a long and multi-stage process. The final stage is the irradiation of targets with heavy curium isotopes. Berkelium-249 accumulates in curium targets as a byproduct with californium-252 and has no value for practical use. However, when berkelium and its decay product californium-249 are irradiated in the reactor, additional amounts of californium-252 can be obtained. This work presents the results of computational and experimental studies on irradiation of mixture of berkelium-249 and californium-249 in the SM-3 reactor. Three different types of reactor targets, containing aluminum oxide ceramic foam, quartz powder and copper tablets as a matrix were investigated. Its neutron-physical and thermophysical characteristics, important for effectiveness of californium-252 accumulation, were evaluated. The main results of irradiated targets radiochemical processing are provided, including comparison of experimental/calculated californium-249 yields and substantiation of optimal target matrix material for irradiation of milligram amounts of berkelium and californium in the SM-3 reactor.

Key words: californium-252, berkelium-249, californium-249, SM-3 reactor, neutron irradiation, isotope production, neutron-physical characteristics, activity measurement, radiochemical processing.

For citation: Kupriyanov A.V., Romanov E.G., Tarasov V.A., Abdullov R.G., Butkalyuk P.S., Minvaliev R.N., Suleimanov I.R., Kornilov D.A. Results of Californium-252 Production by Berkelium-249 Irradiation in the SM-3 Reactor in Matrices of Various Composition. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2026;2:55–69. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2026.2.04> (in Russian).

References

1. Kupriyanov A.V., Romanov E.G., Tarasov V.A. The criteria for optimization and scheduling of reactor large_scale 252Cf production. *Izvestiya Samarskogo nauchnogo tsentra RAN*. 2013;15(4(5)):1073–1077.

URL: http://www.ssc.smr.ru/media/journals/izvestia/2013/2013_4_1073_1077.pdf (accessed Feb. 17, 2026) (in Russian).

2. Klinov A.V., Mamelin A.V., Toporov Yu.G. Effect of neutron field parameters on the yield of ²⁵²Cf. *Atomic Energy*. 1985;58(4):355–338. DOI: <https://doi.org/10.1007/BF01207234>

3. Toporov Yu.G., Tarasov V.A., Kupriyanov A.V., Rotmanov K.V., Butkalyuk P.S., Kuznetsov R.A., Abdullov R.G. Express method to generate californium-252 by irradiating berkelium, *Sbornik trudov AO «GNTs NIIAR»*, Dimitrovgrad, 2018, No. 1, p. 60–68. EDN: YVRQMG. URL: https://www.library.ru/download/elibrary_32784383_82861001.pdf (accessed Feb. 17, 2026) (in Russian).

4. Abagyan L.P., Alekseev N.I., Glushkov A.E., Gurevich M.I. et al. The MCU-RFFI/A Program with the DLC/MCUDAT-1.0 Constant Library. *Problems of Atomic Science and Engineering. Series: Physics of Nuclear Reactors*. 2001;3:50–55 (in Russian).

5. Romanov E.G., Tarasov V.A. ChainSolver Program. Certificate of state registration of computer program No. 2022683765, Russian Federation, application date Nov. 21, 2022, publication date Dec. 08, 2022.

6. Dresner L. Resonance absorption of neutrons in nuclear reactors. Moscow, Gosatomizdat, 1962, 135 p. (in Russian).

7. Beckurts K.H., Wirtz K. Neutron Physics. Moscow, Atomizdat, 1968, 105 p. (in Russian).

8. Brown D.A. et al. ENDF/B-VIII.0: The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data. *Nuclear Data Sheets*. 2018;148:1–142. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2018.02.001>

9. Alyamovskiy A.A. SolidWorks/COSMOSWorks. Finite Element Analysis. Moscow, DMK Publ., 2004, 786 p. (in Russian).

10. Andreev O.I., Zotov E.A., Baranov A.Yu., Kupriyanova N.T. Study of the regularities of ion exchange behavior of californium, einsteinium and fermium in the presence of α -hydroxyisobutyric acid. *Sbornik trudov AO «GNTs NIIAR»*, Dimitrovgrad, 2004, vol. 4, p. 81–88. URL: <https://niiar.ru/publishing/collected-works/archive/item/7037> (accessed Feb. 17, 2026) (in Russian).

Authors

Alexey V. Kupriyanov, senior researcher,

E-mail: kupr-av@orip.niiar.ru

Evgeniy G. Romanov, head of laboratory, Cand. Sci. (Engineering),

E-mail: romanov@orip.niiar.ru

Valery A. Tarasov, deputy head of department,

E-mail: tarasov@orip.niiar.ru

Rafael G. Abdullov, group leader,

E-mail: orip-abdullov@pub.niiar.ru

Pavel S. Butkalyuk, senior researcher,

E-mail: pcbtkalyuk@niiar.ru

Ramil N. Minvaliev, head of department, Cand. Sci. (Phys.-Math.),

E-mail: orip-mpn@orip.niiar.ru

Ildar R. Suleimanov, junior researcher,

E-mail: rik-sir@pub.niiar.ru

Dmitry A. Kornilov, scientific secretary, Cand. Sci. (Phys.-Math.),

E-mail: kornilovda@niiar.ru