

мя, близкое к периоду полураспада  $Mg^{28}$ . Это заставило нас изучить возможности применения к нашему случаю экстракционного метода.

Экстракционное извлечение магния и его очистка могут быть проведены хлороформными растворами 8-оксихинолина (или его производных) как в присутствии алифатического амина [6, 10], так и без него. В водный раствор  $Mg^{2+}$  с концентрацией ацетата натрия приблизительно 0,25 М добавляли раствор аммиака до тех пор, пока значение рН не достигало 6,5—7,0,

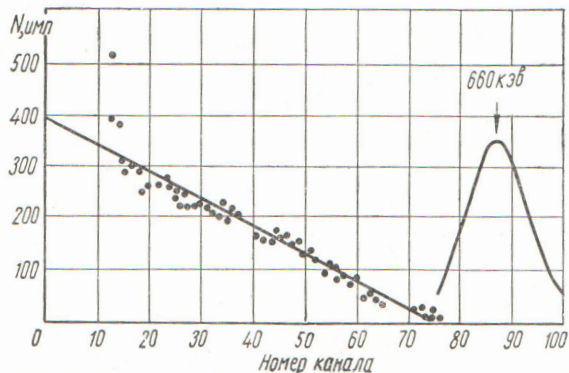


Рис. 2. Верхняя граница  $\beta$ -лучей  $Be^{10}$ .

и экстрагировали катионы тяжелых металлов 0,007 М хлороформным раствором 8-оксихинолина. Далее аммиаком повышали рН водной фазы до  $11 \pm 0,5$  и экстрагировали магний 0,2 М хлороформным раствором 8-оксихинолина, содержащим 10 об. % *n*-бутиламина.

Реэкстракция магния проводилась 2N раствором соляной кислоты. При реэкстракции *n*-бутиламин переходит в водную фазу, что очень нежелательно. Количественная экстракция магния возможна чистым раствором 8-оксихинолина, но более высокой концентрации. Активность выделенного магния составляет 0,10—0,02 мююри на 1 г магния, содержащийся в облученном сплаве. Для сплавов с отношением Li : Mg от 1 : 3 до 4 : 1 величина активности не зависит от состава сплава.

Одним из способов получения  $Be^{10}$  и  $Al^{26}$  является облучение Be, B, Mg, Al быстрыми нейтронами в реакторе, а в случае бора и магния тепловыми нейтронами. Исходя из опубликованных данных [9] и результатов проведенных экспериментов, было установлено, что

основными элементами, от которых необходимо отделить  $Be^{10}$  без носителя, являются B, Ca, Si, Al, Co, Zn, Fe.

Карбид бора из отработанного регулирующего стержня реактора спекали с гидроксидом кальция, растворяли в соляной кислоте и затем в результате соответствующей химической обработки получали раствор, содержащий  $Al^{3+}$  и  $Be^{2+}$ .

Раствор пропускали через катионит дауэкс-50, в котором поглощался  $Al^{3+}$ . После этого раствор выпаривали и остаток прокачивали при 400—500° С. Полученный препарат  $Be^{10}$  был радиохимически чистым,  $\gamma$ -излучение отсутствовало. Идентификация  $Be^{10}$  осуществлялась по энергии  $\beta$ -излучения, измеренной по поглощению в алюминии (560 кэВ). На рис. 2 показана верхняя граница  $\beta$ -излучения  $Be^{10}$ , измеренная спектрометром (560 кэВ).

Поступило в Редакцию 2/VII 1964 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Б. С. Дзелянов, Л. К. Пекер. Схемы распада радиоактивных ядер. М.—Л., Изд-во АН СССР, 1958.
2. D. Strominger, J. Hollander, G. Seaborg. *Rev. Mod. Phys.*, 30, 604 (1958).
3. Н. П. Руденко, А. И. Севастьянов. «Радиохимия», 1, 691 (1951).
4. Н. П. Руденко, А. И. Севастьянов. Радиоактивные изотопы Be<sup>7</sup>, Be<sup>10</sup>. М., Атомиздат, 1964.
5. Дж. Рой, М. Бресести, Дж. Хоугтон. В сб. «Получение и применение радиоактивных изотопов». Международная конференция по применению радиоизотопов в физических науках и промышленности. Копенгаген, 1960. Избр. докл. иностр. ученых. М., Госатомиздат, 1962, стр. 5.
6. Л. С. Козырева, В. В. Левин, И. В. Мещерова. В сб. «Методы получения радиоактивных препаратов». Под ред. Н. Е. Брежневой. М., Госатомиздат, 1962, стр. 103.
7. T. Kohman et al. International Conferences on Radioisotopes in Scientific Research. Aluminium-26, Paris, 1957.
8. C. Egger, D. Hugnes, C. Huddleston. *Phys. Rev.*, 74, 1239 (1948).
9. С. С. Васильев и др. «Атомная энергия», 11, 401 (1961).
10. F. Umland, W. Hoffman. *Analyt. Chim. Acta*, 17, 234 (1957).

УДК 541.45

## Оптимальная удельная $\gamma$ -активность квазигомогенного радиационно-химического аппарата

В. А. Эльтеков

При расчете основных характеристик радиационно-химического аппарата (РХА) последний можно рассматривать как поглощающую излучение систему, состоящую из источников излучения, примыкающих к источникам вспомогательных конструкций, и облучаемой среды. В большинстве случаев эта система заключается в оболочку, а источники, имеющие вид стержней, располагаются в узлах двумерной решетки.

Практический интерес представляет изучение систем, в облучаемой среде которых вследствие достаточной толщины вспомогательных конструкций, окружающих источники, поглощается лишь  $\gamma$ -излучение. При некоторых условиях, частично рассмотренных в работе [1], в гетерогенных системах поглощенная энергия  $\gamma$ -излучения распределяется между компонентами системы так же, как и в гомогенных системах. Будем в даль-



нейшем называть системы (или РХА), допускающие гомогенизацию, квазигомогенными системами (или квазигомогенными РХА).

В качестве одного из параметров квазигомогенных РХА, в которых используются одинаковые источники, удобно выбрать величину  $\gamma$ -активности  $s = \frac{S}{V}$ , приходящейся на единицу объема облучаемого вещества  $V$ , где  $S$  — общая активность источников РХА.

Оптимальным для данного радиационно-химического процесса аппаратом будем считать РХА, для которого затраты  $c$  на производство единицы продукции минимальны. В стационарном (не зависящем от времени) режиме работы РХА в течение любого единичного промежутка времени в объеме облучаемого вещества образуется количество  $Q$  продукта и происходит амортизация оборудования (главным образом источников и оболочки) на величину стоимости  $C$ ; величина  $c_q = C/Q$ . Удельная производительность  $q$  равна для квазигомогенного РХА отношению  $Q/V$ . Для каждого процесса она считается известной функцией мощности дозы  $y_E$  [2], которая пропорциональна удельной активности  $s$ , первоначальной энергии квантов  $E$  и отношению  $f_E(s)$  энергии, поглощаемой в облучаемой среде, к генерируемой энергии  $\gamma$ -излучения. Значение удельной активности  $s_0$ , при котором величина  $c_q$  принимает минимальное значение, определяется, согласно общему правилу нахождения минимума, из уравнения

$$q [y_E(s_0)] \frac{dc_V}{ds}(s_0) - c_V(s_0) \frac{dq}{ds}[y_E(s_0)] = 0, \quad (1)$$

где  $c_V = C/V$ ;  $y_E(s) = k_E E s f_E(s)$ ;  $k_E$  — коэффициент пропорциональности.

Стоимость  $C$  разбивается на два слагаемых, соответствующих стоимости источников и стоимости оболочки:  $C = M_{II} + M_0$ . Нетрудно видеть, что  $M_{II} = msV$ , где  $m$  — стоимость одного распада. Величина  $M_0$  в случае, когда оболочка должна обеспечивать защиту от излучения, зависит от  $s$  довольно сложным образом. Уравнение (1) упрощается, если вблизи значения  $s$ , равного  $s_0$ , выполняется неравенство  $\frac{d}{ds}(M_0/mV) \ll 1$ .

Последнее выполняется, например, в том случае, когда выходящее из системы излучение достаточно слабо при значениях  $s$ , близких к  $s_0$ , или когда толщина требуемой защиты меньше толщины оболочки, необходимой для соблюдения заданных условий проведения процесса (например, высокого давления). При выполнении указанного неравенства уравнение (1) принимает вид

$$q [y_E(s_0)] - (s_0 + a) \frac{dq}{ds}[y_E(s_0)] = 0, \quad (1')$$

где  $a = M_0/mV$ .

Для ряда процессов зависимость удельной производительности от мощности дозы  $y_E$  выражается эмпирической степенной зависимостью [2–4]:  $q = ky_E^\alpha$ , где  $k$  и  $\alpha$  — постоянные для данного процесса величины\* ( $0 < \alpha \leq 1$ ). Поэтому уравнению (1') можно придать вид

$$y_E(s_0) = \alpha (s_0 + a) y_E'(s_0). \quad (1'')$$

Величина  $f$  зависит от концентрации радиоактивного вещества (как поглотителя излучения) в системе.

\* Отметим, что  $\alpha$  связано с показателем степени  $e$ , фигурирующим в работах [2–4], соотношением  $\alpha = 1 - e$ .

На рис. 1 приведена зависимость  $f_E$  от электронной концентрации  $n_e$  вещества источника для широкого диапазона первоначальных энергий  $\gamma$ -квантов и атомных номеров  $Z_{II}$  вещества источника и для двух значений  $Z_{обл}$  атомного номера облучаемого вещества (7,5 и 11). Электронная концентрация связана с  $s$  соотношением

$$n_e = \frac{s}{s + b}. \quad (2)$$

Здесь  $b = q t A_{II} Z_{обл} / A_{обл} Z_{II}$ , где  $q$  — плотность облучаемого вещества;  $t$  — активность единицы массы источника;  $A_{II}$ ,  $A_{обл}$  — атомные веса вещества источника и облучаемого вещества. Точки на рис. 1 соответствуют значениям  $f_E$ , полученным методом Монте-Карло, причем погрешность результатов не превосходит 3%. Путем интерполяции полученных данных можно найти значение  $f_E$  для любого практического случая.

Так как аналитическое выражение функции  $f_E(s)$  неизвестно, то уравнение (1'') приходится решать численно или графически. В последнем случае это уравнение решается, например, с помощью следующего построения. В координатной системе, у которой по оси абсцисс откладывается  $\log(1 + s/a)$ , а по оси ординат  $\log y_E$  (основание логарифмов несущественно), с помощью кривых рис. 1 и соотношения (2) строится график зависимости  $y_E = y_E(s)$  (рис. 2). К полученной кривой проводится касательная с тангенсом угла наклона, равным  $\alpha^{-1}$ . Тогда абсцисса точки касания будет равна  $\log(1 + s_0/a)$ , что позволяет определить  $s_0$ . Действительно, из всех точек на кривой  $y_E = y_E(s)$  соотношение (1'') будет выполняться только для той точки, в которой данная кривая касается некоторой кривой семейства, удовлетворяющего дифференциальному уравнению  $y_E(s) = \alpha (s + a) y_E'(s)$ , которое в данном логарифмическом масштабе является семейством прямых, параллельных прямой, указанной на рис. 2.

Указанный графический метод решения можно использовать и для случая, когда удельная производительность  $q$  не подчиняется степенному закону. Для этого надо, исходя из уравнения (1'), продумать построения, сходные с описанными выше, в координатных осях, вдоль которых откладываются значения  $\log(1 + s/a)$  и  $\log q$ .

Для РХА, гомогенизация которых недопустима, производительность  $Q$  определяется интегрированием по объему облучаемого вещества удельной производительности  $q$ , являющейся в каждой точке объема известной функцией мощности дозы. С помощью теоремы о среднем можно записать:  $Q = Vq(\tilde{y}_E)$ , где  $\tilde{y}_E$  — некоторое промежуточное значение мощности дозы в облучаемом объеме. Кроме того, можно формально приравнять  $\tilde{y}_E$  величине  $\epsilon y_E(s)$ , где  $\epsilon$  — некоторая функция параметров аппарата, обеспечивающая данное равенство.

В работе [2] задача нахождения оптимального аппарата из серии аппаратов, отличающихся друг от друга удельной активностью  $s$  и диаметром  $D$ , решается в предположении, что функция  $\epsilon$  не зависит от  $s$ . Грубо говоря, это предположение равносильно предположению о независимости от плотности размещения источников утечки энергии  $\gamma$ -излучения из системы и неравномерности поля доз при одной и той же средней дозе. Следует отметить, что РХА, для которых выполняется это предположение, также допускают гомогенизацию. Кроме того, в работе [2] предполагается независимость  $f_E$  от  $s$ . Как нетрудно показать, это



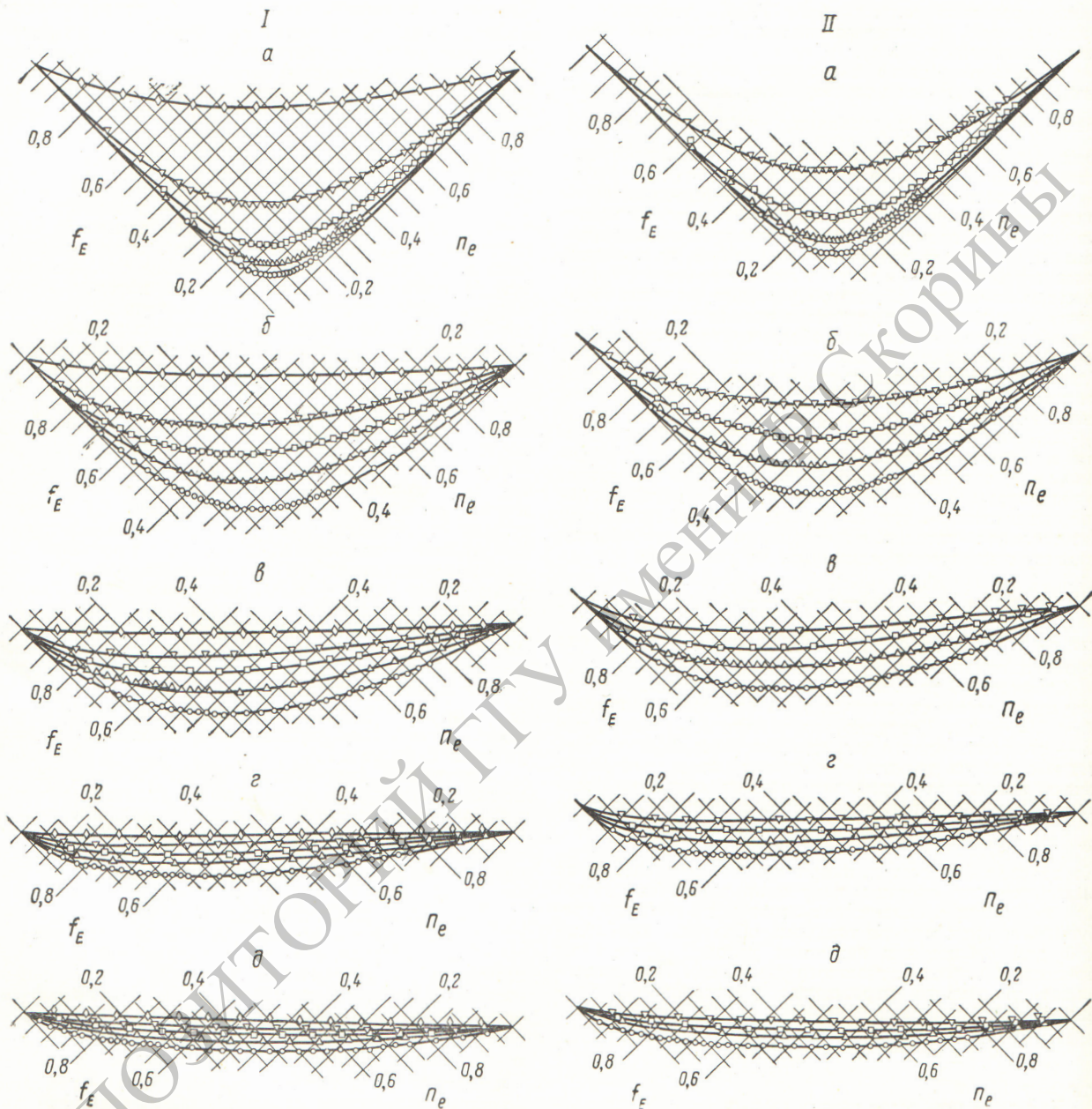


Рис. 1. Зависимость отношения  $f_E$  энергии, поглощаемой в облучаемом веществе, к генерируемой в однородной смеси энергии для  $Z_{обл}$ , равного 7,5 (кривые I) и 11 (кривые II), при  $Z_{и}$ , равном:

◇ — 11; ▽ — 27; □ — 41; △ — 55; ○ — 78. Первоначальная энергия квантов равна: а — 123 кэв; б — 316 кэв; в — 660 кэв; г — 1,25 Мэв; д — 2,76 Мэв.

предположение приводит к абсурду в случае, когда  $\alpha = 1$  (этот случай наиболее часто встречается среди радиационно-химических процессов). Непосредственно из формул, приведенных в [2], следует, что оптимальный аппарат в этом случае должен иметь облучаемый объем, равный нулю, и бесконечно большую удельную активность. В нашем случае (зависимость  $f_E$  от  $s$  учитывается) такого вывода не получается. В случаях, когда  $\alpha \neq 1$ , выводы [2] к противоречию не при-

водят, однако параметры оптимального аппарата, указанные для этих случаев в работе [2], нельзя считать точными. Допуская правомерность первого предположения, найдем поправки, обусловленные отказом от второго предположения, к оптимальным значениям  $s$ ,  $D$  и  $c_q$ , приведенным в работе [2], для аппарата, в котором осуществляется радиационная полимеризация этилена ( $\alpha = 0,5$ ). Обозначим эти значения через  $s_1$ ,  $D_1$  и  $c_{q1}$ . Благодаря первому предполо-



жению, уравнение  $\frac{\partial c_q}{\partial s}(s_0, D_0) = 0$  равносильно уравнению (1'), которое для  $\alpha = 0,5$  запишем в виде  $2s_0 f_E(s_0) = (s_0 + a)[f_E(s_0) + s_0 f_E'(s_0)]$ . (3)

Так как в работе [2] предполагается, что  $f_E' \equiv 0$ , то значение  $s_1$  должно удовлетворять уравнению  $(s_1 - a)f_E(s_1) = 0$ ,

из которого следует, что  $s_1 = a$ . На этот факт указывается также и в [2]. Уравнение (3) при подстановке  $s_0 = a + \Delta s$  принимает вид

$$\Delta s f_E(a + \Delta s) = (2a + \Delta s) f_E'(a + \Delta s). \quad (3')$$

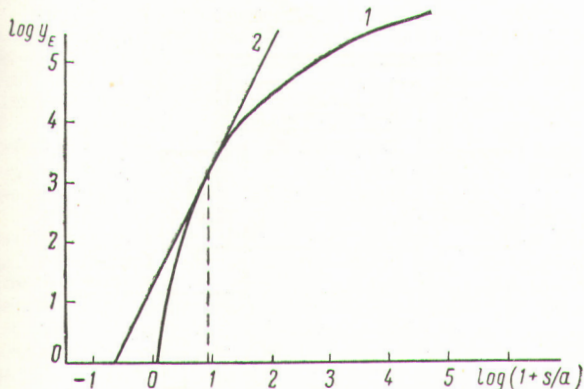


Рис. 2. Графический способ нахождения оптимальной удельной активности  $s_0$  квазигомогенного РХА:

1 —  $y_E = y_E(s)$ ; 2 —  $\log y_E = \alpha^{-1} \log(1 + s/a) + \text{const}$ ;  
— — — — —  $\log(1 + s_0/a)$ .

С точностью до членов порядка малости относительно  $\Delta s$  выше первого выполняется равенство

$$\Delta s = \frac{2a^2 f_E'(a)}{f_E(a)}. \quad (4)$$

С этой же степенью точности будут выполняться равенства

$$\Delta D - D_0 - D_1 = - \left[ \frac{\partial^2 c_q}{\partial D \partial s}(s_1, D_1) / \frac{\partial^2 c_q}{\partial s^2}(s_1, D_1) \right] \Delta s;$$

$$\Delta c_q = c_q(s_0, D_0) - c_q(s_1, D_1) = - \frac{\partial c_q}{\partial s}(s_1, D_1) \Delta s + \frac{\partial c_q}{\partial D}(s_1, D_1) \Delta D.$$

Так как  $\frac{\partial c_q}{\partial D}(s_1, D_1) = 0$ , то  $\Delta c_q = - \frac{\partial c_q}{\partial s}(s_1, D_1) \Delta s$ .

Из последнего равенства с учетом (4) можно получить  $\Delta c_q/c_q = -(\Delta s/2s_1)^2$ . Из него следует, что по-

правка к значению  $c_q$  всегда отрицательна, так как методика [2] не дает минимального значения для  $c_q$ .

Для вычисления  $\Delta s/s_1$  заметим, что  $f_E' = \frac{df_E}{dn_e} \times \frac{dn_e}{ds}$  и что согласно (2) выполняется равенство  $\frac{dn_e}{ds} = \frac{b}{(s+b)^2}$ . Таким образом,  $\Delta s/s_1$  будет определяться выражением

$$\frac{\Delta s}{s_1} = \frac{df_E}{dn_e} \cdot \frac{2ab}{(a+b)^2 f_E(a)}. \quad (5)$$

Для рассматриваемой в работе [2] системы из кобальтовых источников, стальных держателей и этилена величина  $f_E$  равна 0,85. График 1,  $s$  (см. рис. 1) показывает, что значение  $n_e$  при этом равно 0,1, а значение  $df_E/dn_e$  равно  $-1,1$  ( $Z_{II}$  принималось равным 27, а  $Z_{обл}$  равным 7,5). Решая (2) относительно  $b/s$ , получаем для последнего значение 9,0. Подставим все эти значения в (5), тогда получим для  $\Delta s_1/s_1$  величину  $-0,23$ , что соответствует значению  $\Delta c_q/c_q$ , равному  $-0,013$ . Полученная относительная разница для величины  $c_q$  не превосходит для этого конкретного случая неточности расчета [2], обусловленной рядом допущений, помимо рассмотренных. Не исключено, что для других случаев эта разница может оказаться более значительной.

В заключение следует отметить, что описанный выше графический метод позволяет определить не только оптимальную плотность размещения одинаковых источников в облучаемой среде, но и выбрать из числа имеющихся в распоряжении различных изотопных препаратов тот, для которого величина  $c_q$ , характеризующая стоимость производства единицы продукции, минимальна. Для этого необходимо построить графики, представленные на рис. 2, для каждого из препаратов, причем достаточно построить их только вблизи предполагаемых точек касания. Наименьшее значение  $c_q$  у того радиоактивного препарата, для которого касательная к кривой зависимости  $\log y_E$  от  $\log(1 + s/a)$  с тангенсом угла наклона, равным  $\alpha^{-1}$ , занимает наивысшее положение.

Поступило в Редакцию 13/VII 1964 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Б. М. Терентьев, В. А. Эльтеков, Ю. С. Рябухин. «Атомная энергия», 13, 568 (1962).
2. M. M. Levine, M. Steinberg. Nucl. Sci. and Engng, 12, 498 (1962).
3. В. В. Bray et al. Chem. Engng Progr. Sympos. Series, 55, 33 (1959).
4. N. Syrkus, A. Bregger, B. Weinstein. Large Radiation Sources in Industry. Vienna, IAEA, 1960, p. 15.