Радиохимическое определение абсолютных выходов осколков деления Pu^{241} и Pu^{239} медленными нейтронами

А. В. СОРОКИНА, Н. В. СКОВОРОДКИН, С. С. БУГОРКОВ, А. С. КРИВОХАТСКИЙ, К. А. ПЕТРЖАК

УДК 539.173:543.53

При радиохимическом изучении абсолютных выходов осколков деления основной трудностью является определение количества деления в облучаемом образце. Число делений можно или рассчитать по потоку нейтрона и эффективному сечению деления, применяя для расчета, например, формализм Весткотта [1], или измерить экспериментально.

В данной работе число делений в мишенях, идущих на радиохимический анализ, рассчитывали по количеству треков в слюдяных детекторах от осколков деления точно известной доли делящегося вещества, нанесенного на слюду, которая облучалась одновременно с рабочей мишенью в специальной сборке. В качестве детекторов осколков использовали естественную слюду мусковит, предварительно отожженную при температуре 600° С и протравленную в концентрированной HF. После такой обработки треки от осколков спонтанного деления урана, содержащегося в слюде, имеют вид округлых ромбов, резко отличающихся по внешней форме, размерам и глубине от треков вынужденного деления, не мешают подсчету последних и одновременно помогают точной фокусировке на поверхность слюды.

На детекторы — диски из слюды диаметром 20—24 *мм* — наносили известное количество раствора плутония, который получали разбавлением 2 н. азотной кислотой исходного раствора плутония, из которого готовили рабочие мишени для определения выходов. Разбавление и нанесение осуществляли весовым методом. Чтобы капли раствора не растекались по поверхности слюды, при высушивании его применяли тепловой градиент: слюду нагревали на плитке, помещая на подставку с отверстием в центре. Каплю раствора наносили в центр слюды над отверстием. Вследствие плохой теплопроводности слюды температура в центральной части над отверстием несколько меньше, чем у края слюды, и этого достаточно, чтобы удержать в центре диска каплю раствора весом до 70 *мг*. После высушивания слюду с нанесенным плутонием закрывали слюдой из той же партии.

Слюдяные детекторы с нанесенным плутонием укладывали вместе с рабочими мишенями в стаканчики из алюминиевой фольги. В эту же сборку помещали слюду, на которую была нанесена 2 н. HNO_3 для учета фона от этого раствора. Внутреннюю поверхность стаканчика закрывали слюдой, чтобы исключить контакт слюдяных детекторов с алюминием. Детекторы и рабочие мишени также разделяли прокладкой из слюды. Всю сборку зажимали между двумя дисками из алюминия (рис. 1).

Облучение образцов производили в реакторе Физико-технического института им. А. Ф. Иоффе в потоках нейтронов, для которых кадмиевое отношение для золота оказалось равным 4,26. Поглощение нейтронов в рабочих мишенях, измеренное по разности удельного количества треков в слюдяных детекторах, расположенных между рабочими мишенями и с внешних сторон их, было меньше 0,5%.

После облучения слюду выдерживали 2—3 недели и протравливали в 28%-ной HF в течение 6—8 *ч* при комнатной температуре в специальном приборе (рис. 2). Слюду зажимали между тефлоновой прокладкой и стаканчиком, в который наливали кислоту. Доступ кислоты к обратной стороне слюды исключен, поэтому треки протравливаются только с одной стороны

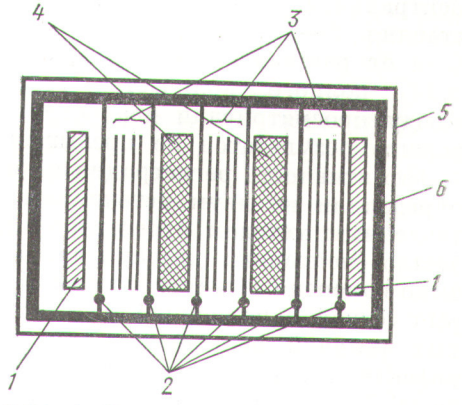

Рис. 1. Расположение рабочих мишеней и детекторов в сборке для облучений:
1 — мишени из золота; *2* — разделительные слюды; *3* — слюдяные детекторы; *4* — рабочие мишени с плутонием; *5* — стаканчик из алюминиевой фольги; *6* — прокладка из слюды.

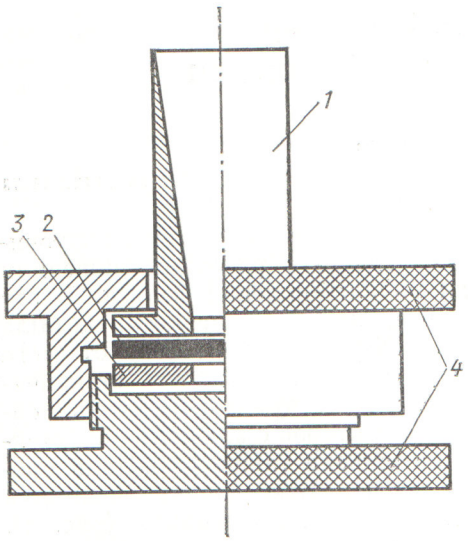

Рис. 2. Прибор для протравливания облученных слюд:

1 — тефлоновый стаканчик; *2* — слюда; *3* — тефлоновая прокладка; *4* — обойма.

слюды и на определенной площади, ограниченной диаметром отверстия стаканчика, что значительно облегчает последующий подсчет треков под микроскопом. После окончания травления протравленный участок очерчивали иглой и количество треков на очерченной площади подсчитывали с помощью микроскопа МБИ-9 при увеличении в 300 раз.

Фон, т. е. количество треков от осколков деления урана, содержащегося в слюде, определяли для каждой слюды по периферийным участкам на очерченной площади вдали от центральной зоны со слоем плутония. Он составлял 5—7% полного количества треков. Фон от раствора 2 н. HNO_3 составлял 1,5—3,0% полного количества треков. Каждую слюду просматривали два сотрудника; расхождение результатов не превышало 1,5%.

Эффективность регистрации осколков слюдой определяли по двум источникам Cf^{252}, приготовленным методом агрегатной отдачи. Количество спонтанных делений в этих источниках было измерено с помощью ионизационной камеры с сеткой, заполненной аргоном. Для выбранных условий обработки и травления слюды эффективность регистрации осколков составила 96,7%, а среднеквадратичная ошибка десяти измерений — 0,62%.

Число делений в рабочей мишени рассчитывали, исходя из количества треков осколков, зарегистрированных детектором, и доли делящегося вещества, нанесенного на него. Таким образом, отпадала необходимость точно измерять количество делящегося вещества на всех мишенях. Среднеквадратичная ошибка определения числа делений в рабочих мишенях составляла 2—3% с учетом всех ошибок: на разбавление и нанесение растворов, подсчет количества треков и определение эффективности слюды.

Этот метод измерения количества делений был использован для радиохимического определения абсолютных выходов Mo^{99}, Ce^{141}, Ce^{144} и Ba^{140} при делении Pu^{239} и Pu^{241} медленными нейтронами. Рабочие мишени растворяли в 6 м. HCl в присутствии носителей: бария, церия и молибдена — 10, 3 и 1 *мг* соответственно. Все элементы выделяли из одной пробы. Разделение и очистку осуществляли в основном ионообменными методами. Использовали колонки диаметром 6 *мм* и высотой 100 *мм*. Барий и церий отделяли от молибдена и большей части плутония сорбцией последних на анионообменной смоле дауэкс 1X8 из 6 м. HCl [2]. Из элюатов, содержащих барий и церий и частично плутоний, осаждали гидроокиси совместно с карбонатами с помощью NaOH и Na_2CO_3. Осадок растворяли в HNO_3 и разделяли барий и церий осаждением $Ba(NO_3)_2$ дымящей азотной кислотой при охлаждении во льду. Осадок $Ba(NO_3)_2$ растворяли в воде; переосаждали еще два раза и разделяли барий и стронций ацетатом аммония на катионообменной смоле дауэкс 50X8 [3]. Химический выход бария определяли весовым методом по $BaSO_4$ или $BaCrO_4$.

Растворы, оставшиеся после осаждения нитрата бария, объединяли, разбавляли водой до 8 н. HNO_3, стабилизировали Pu(IV) и извлекали его из раствора сорбцией на аниоците дауэкс 1X8 [4]. Элюат, содержащий церий, сразу же поступал на другую колонку, заполненную такой же смолой, смешанной с порошком PbO_2. В 7—8 н. азотной кислоте PbO_2 окислял церий до четырехвалентного состояния и церий поглощался анионитом [5]. Десорбцию церия осуществляли с помощью 0,5 *М* HCl с несколькими каплями H_2O_2. Из полученного раствора осаждали $Ce(OH)_3$ с помощью NaOH. Осадок промывали, растворяли в HNO_3 и осаждали фторид церия для дополнительной очистки. Химический выход церия определяли колориметрически по окраске Ce(IV) в щелочной среде в присутствии трилона-Б [6] по сравнению со стандартными растворами той же концентрации, что и исследуемые. Ошибка

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорины

определения химического выхода церия оценивалась в 2—3%, хотя сходимость результатов была лучшей.

Молибден десорбировали со смолы с помощью 3 м. HCl. Затем его очищали от сурьмы сорбцией последней на катионите КУ-2 из 12 м. HCl [7]. Элюат упаривали, осадок растворяли в NaOH и дважды осаждали $La(OH)_3$ добавлением лантана. Осадок отбрасывали, а щелочной раствор нейтрализовали концентрированной HCl до нейтральной реакции по фенолфталеину, добавляли равный объем концентрированной HCl и повторяли цикл анионообменной очистки молибдена. Десорбцию молибдена со смолы осуществляли 1 м. HCl. Технеций в этих условиях не десорбируется [2]. Химический выход молибдена определяли колориметрически по окраске комплекса Mo (V) с роданидом. В качестве восстановителя использовали аскорбиновую кислоту [8]. Как и для церия, стандартные растворы молибдена готовили примерно той же концентрации, что и исследуемые, и колориметрировали их одновременно.

Активность препаратов церия, молибдена и бария измеряли в проточном пропановом $4\pi\beta$-счетчике. Аликвотные доли растворов церия, молибдена и бария наносили на позолоченные коллодиевые пленки и высушивали. Плотность пленок была не более 15 *мкг/см*^{2}; количество сухого вещества на пленке не превышало 30 *мкг/см*^{2}, а в случае Mo^{99} — 5 *мкг/см*^{2}.

Ba^{140} измеряли в равновесии с La^{140}. Для измерения активностей Ce^{141} и Ce^{144} применяли фильтры толщиной 6 и 250 *мг/см*^{2}. Через фильтр 250 *мг/см*^{2} проходят только β-частицы Pr^{144}, по которому рассчитывали активность Ce^{144}. Активность Ce^{141} определяли по разности активностей, измеренных через фильтры 6 и 250 *мг/см*^{2} с учетом коэффициентов поглощения β-частиц Ce^{141} и смеси Ce^{144} и Pr^{144} [9]. Активность Mo^{99} рассчитывали по методу наименьших квадратов из кривой нарастания активности Tc^{99m} в Mo^{99}. Измерения активности начинали спустя 0,5—1,0 *ч* после отделения Tc^{99m}.

В табл. 1 приведены вычисленные абсолютные кумулятивные выходы и среднеквадратичные ошибки 4—7 опытов; для сравнения приведены также данные других авторов.

При расчете выходов осколков деления Pu^{241} учитывали вклад от деления Pu^{239}, содержаще-

Абсолютные кумулятивные выходы осколков деления Pu^{239} и Pu^{241} медленными нейтронами Таблица 1

Изотоп	Абсолютные выходы, %			
	Pu^{239}		Pu^{241}	
	настоящая работа	другие работы	настоящая работа	другие работы
Mo^{99}	6,17±0,19	6,44 [12] * 5,9 [14] ** 6,10 [15]	6,15±0,16	6,00 [13] ** 6,17 [16] *
Ba^{140}	—	5,58 [11] * 5,16 [17] **	5,64±0,11	6,21 [17] ** 5,78 [18] * 5,86 [16] *
Ce^{141}	5,18±0,13	5,75Z [14] ** 5,23 [11] * 5,1 [15]	4,81±0,14	5,11 [13] ** 4,84 [18] *
Ce^{144}	3,85±0,09	3,84 [11] * 4,09 [14] ** 3,82 [20] * 3,79 [15]	4,08±0,14	4,13 [16] * 4,07 [18] * 4,08 [19] *

* Выходы стабильных изотопов указанных масс измерены масс-спектрометрическим методом с ошибкой в области легких масс не более 3—4%, а в области тяжелых масс — не более 2%.
** Выходы определены радиохимическим методом с ошибкой 4—5%.

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорины

Абсолютные выходы редкоземельных элементов и иттрия при делении Pu^{239} и Pu^{241} медленными нейтронами

Таблица 2

Изотоп	Pu^{239}		Pu^{241}	
	относительный выход	абсолютный выход, %	относительный выход	абсолютный выход, %
La^{141}	1,22	4,70±0,26	1,10	4,50±0,17
Ce^{141}	1,32	5,09±0,14	1,17	4,78±0,18
Ce^{143}	1,04	3,99±0,21	0,952	3,88±0,16
Pr^{143}	1,11	4,27±0,17	1,06	4,31±0,15
Ce^{144}	1,00	3,85±0,09	1,00	4,08±0,14
Pr^{145}	0,919	3,54±0,16	0,739	3,01±0,14
Nd^{147}	0,553	2,13±0,09	0,574	2,34±0,09
Pm^{147}	0,555	2,14±0,13	0,577	2,35±0,12
Nd^{149}	0,296	1,14±0,08	0,361	1,47±0,06
Pm^{149}	0,338	1,30±0,05	0,373	1,52±0,08
Pm^{151}	0,192	0,741±0,036	0,207	0,846±0,050
Sm^{153}	0,0960	0,370±0,015	0,128	0,522±0,022
Eu^{155}	0,0443	0,171±0,019	0,0568	0,231±0,022
Sm^{156}	0,0313	0,121±0,005	0,0401	0,163±0,007
Eu^{156}	0,0322	0,124±0,005	0,0417	0,170±0,006
Eu^{157}	0,0198	0,0764±0,0037	0,0319	0,130±0,006
Gd^{159}	0,00561	0,0216±0,0007	0,0113	0,0462±0,0018
Tb^{161}	0,00134	0,00515±0,00020	0,00200	0,00815±0,00032
Y^{91}	0,639	2,46±0,08	0,409	1,67±0,06

гося в образцах, который составлял 4—7% полного числа делений. Значения сечений деления Pu^{239} и Pu^{241} нейтронами реакторного спектра взяты из работы [10], а выход Ba^{140} для Pu^{239} — из работы [11]. Во всех случаях расчет производили, как и в работе [9], с учетом выходов предшественников в цепочках.

Ранее нами были определены кумулятивные выходы редкоземельных элементов и Y^{91} относительно кумулятивного выхода Ce^{144} при делении Pu^{239} и Pu^{241} медленными нейтронами [9]. Абсолютные выходы этих элементов, рассчитанные на основании абсолютного выхода Ce^{144}, определенного в данной работе, приведены в табл. 2.

Незначительные изменения величин относительных выходов по сравнению с такими же данными работы [9] объясняются тем, что в табл. 2 включены результаты еще одного опыта. Значения выходов Sm^{156}, Eu^{156} и Sm^{156} пересчитаны с использованием периода полураспада Sm^{156} (9,4 ± 0,1) *ч* [21].

Поступила в Редакцию 22/VII 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. C. Westcott, W. Walker, T. Alexander. Доклад № 202, представленный Канадой на Вторую международную конференцию по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958).
2. E. Huffman, R. Oswalt, L. Williams J. Inorg. Nucl. Chem., **3**, 49 (1956).
3. О. М. Лилова, Б. К. Преображенский. «Радиохимия», **2**, 731 (1960).
4. J. Ryan, E. Wheelwright. J. Indian. Engng Chem., **51**, 60 (1959).
5. F. Moor. Analyt. Chem., **39**, 1874 (1967).
6. А. К. Бабко, О. М. Еременко. «Ж. аналит. хим.», **XIII**, 206 (1958).
7. А. И. Калинин, Р. А. Кузнецов, В. В. Моисеев. «Радиохимия», **4**, 565 (1962).
8. А. И. Лазарев, В. И. Лазарева. «Заводская лаборатория», **24**, 798 (1958).
9. Н. В. Сковородкин и др. «Радиохимия», **12**, 487 (1970).
10. C. Bigham, CRRP-1183 (AECL-1910), 1964. Цитир. по BNL-325 (1965).
11. H. Fickel, R. Tomlinson. Canad. J. Phys. **37**, 926 (1959).
12. H. Fickel, R. Tomlinson. Canad. J. Phys., **37**, 916 (1959).
13. I. Croall, H. Willis, AERE-R-6154 (1969).
14. I. Croall et al. AERE-R-5086 (1967).
15. S. Katcoff. Nucleonics, **18**, 201 (1960).
16. F. Lisman, W. Maeck et al. Idaho Nuclear Corporation Report IN 1277 (TID-4500), 1969. Цитир. по [13].
17. A. Okazaki, W. Walker. Canad. J. Phys., **43**, 1036 (1965).
18. H. Farrar et al. Canad. J. Phys., **42**, 2063 (1964).
19. B. Rieder et al. USAEC Document GEAP-5505 (1967). Цитир. по [13].
20. B. Rieder, M. Meek. USAEC Report APED-5398 A (1968).
21. C. Lederer, J. Hollander, I. Perlamn. Table of Isotopes, 6th ed., New York, Wiley (1967)

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорины