

## Определение скоростей накопления изотопов актинидных элементов в активной зоне реактора СМ-2

В. Я. ГАБЕСКИРИЯ, В. А. ДАВИДЕНКО, Ю. С. ЗАМЯТНИН, В. С. ПРОКОПЕНКО,  
А. П. ЧЕТВЕРИКОВ

УДК 539.172.4

Вследствие сильной зависимости сечений радиационного захвата и деления тяжелых ядер от энергии нейтронов существенную роль при накоплении далеких изотопов трансурановых элементов играет спектр нейтронов реактора. Расчеты, выполненные на основании известных резонансных параметров, показывают, что эффективные сечения поглощения нейтронов некоторыми ядрами должны сильно возрастать по мере увеличения доли резонансных нейтронов в спектре реактора.

Потоки и спектры нейтронов в высокопоточных реакторах ловушечного типа (СМ-2, HFIR), имеющих небольшую активную зону и высокую концентрацию топлива, сильно изменяются по радиусу и высоте реактора [1]. В водяной ловушке образуется высокий поток тепловых нейтронов ( $>10^{15}$  нейтр/см<sup>2</sup>·сек), а доля резонансных нейтронов составляет от 3 до 10% в зависимости от местоположения облучаемой мишени и загрузки ловушки. В то же время внутри топливных сборок поток резонансных нейтронов практически равен потоку тепловых. Следовательно, имеется возможность выбора оптимальных условий облучения стартовых веществ в зависимости от свойств исходных и получаемых изотопов. В некоторых случаях выгодно облучать стартовые материалы в жестком спектре нейтронов активной зоны. В реакторе СМ-2 это легко осуществить, так как его активная зона состоит из отдельных топливныхборок, в которые можно помещать облучаемые вещества. Поэтому представляло интерес измерить скорости превращений изотопов, обладающих большими значениями резонансных интегралов, при их облучении в активной зоне реактора.

С этой целью в кассетах активной зоны вместо части твэлов устанавливались экспериментальные ампулы с актинидными элементами и определялась скорость выгорания отдельных изотопов. Исходные количества облучаемых изотопов не превышали 150 мкг, что практически исключало эффекты самоэкранирования. Рядом с облучаемыми мишенями располагались мониторы из обогащенного урана. С их помощью измерялся интегральный поток Весткотта

по выгоранию U<sup>235</sup> (эффективное сечение этого изотопа слабо зависит от спектра нейтронов).

Для определения эффективного сечения Pu<sup>240</sup> облучалась мишень из плутония, содержащего 80% этого изотопа. Ввиду того что в облучаемом образце присутствовал в небольшом количестве Pu<sup>239</sup>, в ампуле одновременно облучалась контрольная мишень Pu<sup>239</sup> для определения поправки на содержание этого изотопа. После облучения количество изотопов плутония определялось на масс-спектрометре МИ-1311 методом изотопного разбавления. Результаты изотопного анализа облученных мишеней плутония представлены в таблице.

Результаты изотопного анализа облученных мишеней плутония (содержание изотопов, %)

Изотоп	Мишень Pu <sup>240</sup> , $\Phi t = (1,17 \pm 0,03) \cdot 10^{21}$ нейтр/см <sup>2</sup>	Мишень Pu <sup>239</sup> , $\Phi t = (1,21 \pm 0,03) \cdot 10^{21}$ нейтр/см <sup>2</sup>
Pu <sup>239</sup>	3,32 ± 0,04	39,58 ± 0,34
Pu <sup>240</sup>	8,00 ± 0,05	12,67 ± 0,11
Pu <sup>241</sup>	62,50 ± 0,25	37,13 ± 0,25
Pu <sup>242</sup>	26,10 ± 0,10	10,61 ± 0,18

Из приведенных в таблице данных следует, что эффективное сечение Pu<sup>240</sup> для нейтронов активной зоны СМ-2 значительно выше, чем для теплового спектра (530 барн [2]), так как при облучении плутониевых мишеней тепловыми нейтронами содержание Pu<sup>240</sup> всегда превышает содержание Pu<sup>241</sup>.

По количеству Pu<sup>240</sup> до и после облучения и интегральному потоку нейтронов было найдено эффективное сечение поглощения нейтронов этим изотопом:

$$\hat{\sigma}_a(\text{Pu}^{240}) = 2900 \pm 100 \text{ барн.}$$

Анализ мишени Am<sup>241</sup>, облученной в активной зоне потоком  $(1,24 \pm 0,03) \cdot 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup>, показал, что эффективное сечение этого изотопа также существенно выше, чем для теплового спектра (670 барн [2]). После растворения облученной мишени количество Am<sup>241</sup> определялось по  $\alpha$ -активности выделенной фракции америция и данным масс-спектрометрического анализа. В результате этого опыта было най-

дено:

$$\hat{\sigma}_a(\text{Am}^{241}) = 1800 \pm 100 \text{ барн.}$$

Облученная мишень  $\text{Am}^{241}$  имела следующий изотопный состав:  $69,2 \pm 0,2\%$   $\text{Am}^{241}$ ;  $2,8 \pm 0,09\%$   $\text{Am}^{242m}$ ;  $28,0 \pm 0,6\%$   $\text{Am}^{243}$ . Таким образом, после установления равновесия отношение количеств изотопов  $\text{Am}^{242m}/\text{Am}^{241}$  в три-четыре раза выше, чем в случае облучения  $\text{Am}^{241}$  в тепловом спектре нейтронов [3], и равно  $\sim 0,04$ . Аналогичный эффект наблюдается при накоплении изотопов кюрия. После облучения мишени  $\text{Am}^{243}$  в активной зоне СМ-2 потоком  $(1,33 \pm 0,04) \cdot 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup> был получен образец кюрия следующего состава:  $85,8 \pm 0,3\%$   $\text{Cm}^{244}$ ;  $12,2 \pm 0,3\%$   $\text{Cm}^{245}$  и  $1,9 \pm 0,3\%$   $\text{Cm}^{246}$ . В данном случае равновесное отношение изотопов  $\text{Cm}^{245}/\text{Cm}^{244}$  почти на порядок выше, чем в образцах, полученных при накоплении кюрия в реакторе с тепловым спектром нейтронов [4]. Это объясняется тем, что в резонансной части спектра эффективное сечение  $\text{Cm}^{244}$  значительно выше, чем в тепловой.

При облучении реальных мишеней скорости накопления изотопов будут меньше полученных вследствие эффекта самоэкранирования.

На основании изложенного можно сделать следующие выводы. Скорости накопления отдельных изотопов трансурановых элементов, а следовательно, и изотопные составы этих элементов могут изменяться в широких преде-

лах в зависимости от условий облучения стартовых материалов. Эффективные сечения захвата нейтронов четно-четными и нечетно-четными ядрами существенно возрастают по мере увеличения доли резонансных нейтронов в спектре реактора. Поэтому облучение исходных веществ в жестком спектре активной зоны СМ-2 приводит к образованию элементов с повышенным содержанием изотопов, имеющих нечетное число нейтронов. Это дает возможность получать элементы с резко отличающимися изотопными составами, что облегчает последующее изучение ядерных свойств отдельных изотопов.

В заключение авторы выражают благодарность В. А. Цыканову за помощь при облучении экспериментальной ампулы и обсуждение результатов, а также В. В. Грызиной и В. В. Иваненко за проведение радиометрических анализов.

Поступила в Редакцию 22/VII 1970 г.  
В окончательной редакции 10/V 1971 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. С. М. Фейнберг и др. Доклад № 320 на III Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1964).
2. I. Milsted et al. Nucl. Appl., 1/2, 136 (1965).
3. R. Schuman et al. WASH, No. 1056, 94 (1965).
4. E. Hulet et al. Phys. Rev., 107, 1294 (1957).

## БИБЛИОГРАФИЯ

Морская радиоэкология. Под ред. Г. Г. Поликарпова. Киев, «Наукова думка», 1970, 276 стр.

В монографии обобщены результаты многолетних исследований по изучению закономерностей миграции важнейших искусственных радиоактивных изотопов в морской среде и действия ионизирующих излучений на гидробионты. В первом разделе описаны методы исследований морской радиоэкологии, включающие особенности отбора проб и определения радиоактивных и стабильных изотопов в морских организмах и среде (глава 1), и методы статистической обработки результатов радиоэкологических исследований (глава 2). Во втором разделе освещены вопросы радиоэкологии морских гидробионтов: закономерности сорбции и десорбции радиоактивных изотопов морскими грунтами и водорослями (глава 3), кинетика обмена радиоактивных изотопов у морских водорослей (глава 4), динамика радиоэкологических процессов концентрирования (глава 5), распределение радиоактивных изотопов в морских организмах (глава 6), цитогенетика и действие малых

доз ионизирующих излучений на рыб и гидробионтов (глава 7). Третий раздел посвящен радиоэкологии отдельных акваторий — южных морей СССР (глава 8), тропических морей средиземноморского типа (глава 9), а также описанию итогов радиоэкологических исследований в океанах (глава 10). В четвертом разделе в обобщенном виде описаны основные закономерности накопления радиоактивных изотопов морскими растениями и животными.

Р. А.  
Г. Г. Поликарпов и др. Радиоэкологические исследования Средиземного моря. Киев, «Наукова думка», 1970, 231 стр.

Изложены результаты изучения особенностей распределения радиоактивных продуктов деления, некоторых стабильных изотопов, а также <sup>238</sup>U в водах Средиземного моря и накопления этих изотопов в растениях и животных. Описаны методы экспедиционных радиоэкологических исследований.

Р. А.