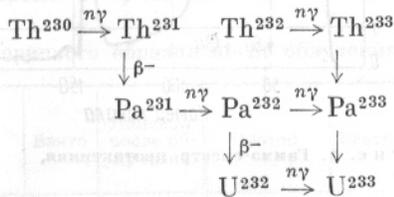


Исследование накопления изотопов протактиния и урана при облучении Th^{230} и Th^{232} тепловыми нейтронами

З. К. КАРАЛОВА, П. Н. ПАЛЕЙ, Р. Н. ИВАНОВ,
В. Я. ГАБЕСКИРИЯ, З. И. ПЫЖОВА

УДК 621.039.554

При облучении в реакторе Th^{230} и Th^{232} тепловыми нейтронами образуются изотопы Ra^{231} , Ra^{233} , U^{232} , U^{233} по реакциям:



Сечение захвата тепловых нейтронов для Th^{230} составляет, согласно последним данным [1], примерно 56,8 барн, поэтому даже при непродолжительном облучении Th^{230} в реакторе потоком нейтронов с большой плотностью можно получить значительные количества Ra^{231} и U^{232} . В работе [2] были описаны первые опыты по получению протактиния из облученного нейтронами образца окиси тория, обогащенного Th^{230} .

Цель настоящей работы — определение накопления изотопов протактиния и урана, а также выгорания изотопов тория при облучении препаратов с изотопным соотношением $\text{Th}^{230}/\text{Th}^{232} = 1,462$ потоком тепловых нейтронов $1 \cdot 10^{15}$ нейтр/см²·сек.

Эксперименты

Схема выделения тория из урановой руды и очистки ториевого образца, а также данные масс-спектрометрического анализа по изотопному составу образца и содержанию примесей в нем были приведены в опубликованной ранее работе [1]. Ториевый препарат в виде азотно-кислой соли, содержащей 9,2 мг Th^{230} и 13,45 мг Th^{232} , помещали в алюминиевую ампулу и облучали в реакторе в течение десяти эффективных

суток. Интегральный поток нейтронов при облучении составлял $0,925 \cdot 10^{21}$ нейтр/см². Через 76 дней после облучения препарат растворяли при нагревании в 20 мл 8 н. HNO_3 в присутствии 0,5 мл 0,05 н. HF . Общий вес раствора образца составлял 20,03 г, а суммарная α -активность — $5,22 \cdot 10^9$ расп/мин.

Для извлечения протактиния и отделения его от изотопов урана, тория, осколков, дочерних продуктов распада U^{232} применяли силикагель со следующими характеристиками: удельный объем пор 0,933 см³/г, удельная поверхность 264/388 м²/г. Этот метод был описан ранее в работе [3]. Вся работа проводилась во фторопластовой и полиэтиленовой посуде.

Аликвотную часть исходного раствора (1,07 г) разбавляли 8 н. HNO_3 до объема 5 мл и пропускали со скоростью 0,5 мл/мин через хроматографическую колонку высотой 10 см и диаметром 0,5 см, заполненную силикагелем (зернение 0,25—0,5 мм; объем 2 мл). После прохождения основной массы раствора колонку промывали 20 мл 6 н. HNO_3 . Фильтрат и промывные воды объединяли для дальнейшего определения в них изотопов урана и тория. Протактиний извлекали 40 мл раствором 0,5 М $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$.

Спектр α -излучения протактиниевой фракции исследовали с помощью альфа-спектрометра с кремниевым детектором. Сцинтилляционный счетчик α -частиц применялся для определения концентрации Ra^{231} . Мишени приготавливали весовым методом. Содержание Ra^{233} определяли путем γ -спектрометрического анализа. Дополнительный контроль фильтрата и промывных вод на содержание протактиния осуществляли также γ -спектрометрическим методом путем регистрации $E_\gamma = 0,311$ Мэв от Ra^{233} .

Для отделения урана от тория, осколков и дочерних продуктов распада U^{232} использовали экстракцию раствором 1-фенил-3-метил-4-бензоилпиразолона-5 (ФМБП) в бензоле. Экстракция тория с ФМБП была описана нами ранее [4]. Растворы ФМБП готовили по точной навеске реагента (квалификация «ч.»), очищенного двукратной перекристаллизацией из гептана. Фильтрат и промывные воды после пропускания исходного раствора через силикагель упаривали досуха, обрабатывали сухой остаток дважды при нагревании 2 мл 0,1 н. HCl и растворяли в 10 мл 0,1 н. HCl. Раствор переносили в делительную воронку, добавляли 10 мл 0,2 М ФМБП в бензоле и в течение 10 мин экстрагировали уран и торий. Примеси, присутствующие в пробе, оставались в водной фазе. Уран реэкстрагировали 10 мл 2 н. HCl, промывали реэкстракт бензолом и определяли содержание U^{232} и U^{233} методом изотопного разбавления на масс-спектрометре МИ-1311, используя в качестве метки U^{235} . Торий из экстракта извлекали 6 н. H_2SO_4 . Определение тория можно проводить на масс-спектрометре непосредственно из фильтрата после выделения протактиния без предварительного отделения от урана.

Результаты и их обсуждение

В процессе прохождения анализируемого раствора через колонку с силикагелем протактиний полностью отделялся от сопутствующих элементов и затем количественно извлекался раствором щавелевой кислоты. Наличие в спектре оксалатной фракции (рис. 1) лишь группы α -частиц с энергиями 5,01; 4,94

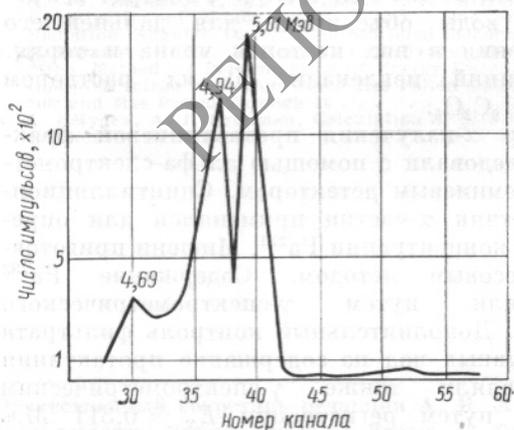


Рис. 1. Альфа-спектр протактиния.

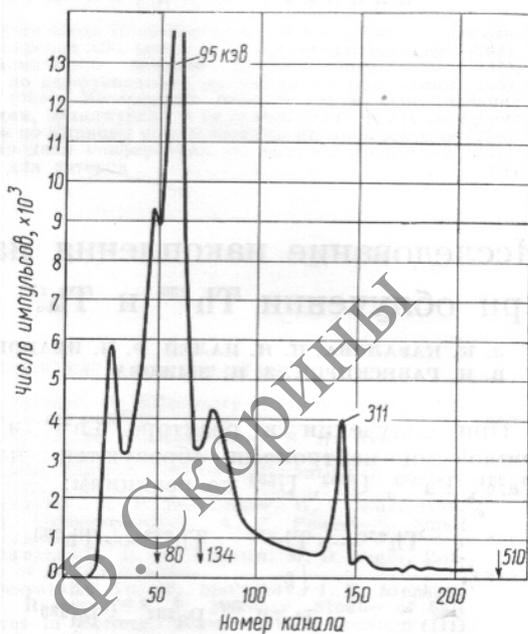


Рис. 2. Гамма-спектр протактиния.

и 4,69 МэВ подтверждает радиохимическую чистоту выделенного изотопа Ra^{231} . На рис. 2 приведен γ -спектр протактиния. Было определено, что содержание Ra^{231} в исходном растворе составляет 0,32 мг, а Ra^{233} — 0,014 мг. В фильтрате и промывных водах протактиний γ -спектрометрическим методом обнаружен не был. Согласно рис. 3, в фильтрате содержатся U^{232} (5,22 и 5,34 МэВ), Th^{230} (4,67 МэВ), изотопы висмута (6,25 МэВ) и др.

Наибольшее различие в поведении внутрикомплексных соединений урана и тория

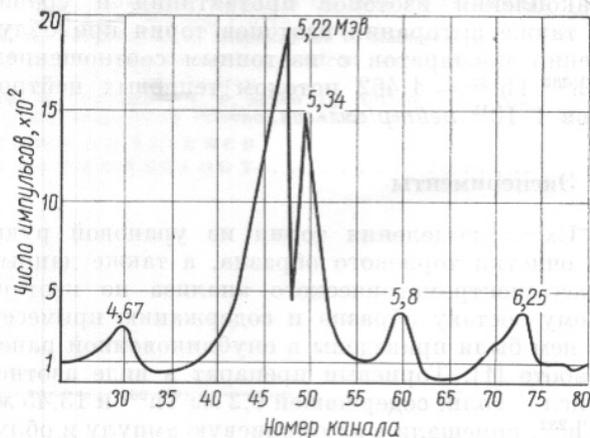


Рис. 3. Альфа-спектр урано-ториевой фракции.

с ФМБП наблюдалось в 2 н. HCl, а осколки и дочерние продукты распада U^{232} отделялись от них в 0,1 н. HCl. Из 0,1 н. HCl раствором 0,2 М ФМБП в бензоле уран в присутствии макроколичества тория в течение 10 мин экстрагируется на 90%. При последующей рекстракции 2 н. HCl уран полностью переходил в водную фазу, а торий на 98% оставался в органической фазе. Радиохимическая чистота урана, выделенного по этой методике, была подтверждена данными α -спектрометрического анализа. Методом изотопного разбавления на масс-спектрометре было найдено, что содержание изотопов U^{232} и U^{233} составляет соответственно 0,0503 и 0,1426 мг. После облучения содержание Th^{230} составило 8,5 мг, а Th^{232} — 13,25 мг. В таблице приведен состав образца тория после облучения.

Состав ториевого образца после облучения (мг)

Изотоп	Взято	Найдено после облучения	Изотоп	Взято	Найдено после облучения
Th^{230}	9,2	8,5	Ra^{233}	—	0,014
Th^{232}	13,45	13,25	U^{232}	—	0,0503
Ra^{231}	—	0,32	U^{233}	—	0,1426

Таким образом, при облучении ториевого препарата с изотопным соотношением $Th^{230}/Th^{232} = 1,462$ в течение десяти эффективных суток потоком тепловых нейтронов 1×10^{15} нейтр/см²·сек в Ra^{231} превратилось

3,5% исходного Th^{230} . Выход U^{232} при этом составил 0,54%, отношение U^{233}/U^{232} оказалось равным 2,83. Результаты анализа образца на торий до и после облучения свидетельствуют об увеличении изотопного соотношения Th^{232}/Th^{230} от 1,464 до 1,557, что связано с более быстрым выгоранием Th^{230} по сравнению с Th^{232} . Выгорание Th^{230} произошло на 7,6%, а Th^{232} — на 1,4%. Из полученных экспериментальных данных были рассчитаны эффективные сечения радиационного захвата Th^{230} , Ra^{231} , U^{232} , которые оказались соответственно равны $78,5 \pm 12$; 280 и 170 барн. Полученные результаты использовали для расчета накопления Ra^{231} для данной навески Th^{230} в зависимости от интегрального потока нейтронов. Максимальный выход Ra^{231} при плотности потока тепловых нейтронов $1 \cdot 10^{15}$ нейтр/см² × сек через 100 эффективных суток составит примерно 26%.

Авторы выражают благодарность Ю. П. Новикову и И. А. Лебедеву за проведение ряда измерений на спектрометре.

Поступила в Редакцию 22/IX 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

- С. М. Калепин и др. «Атомная энергия», 24, 243 (1968).
- И. А. Лебедев и др. «Радиохимия», 3, 760 (1961).
- А. В. Давыдов, П. Н. Палей. «Тр. Комис. по аналит. химии АН СССР», 15, 368 (1965).
- З. К. Каралова, З. И. Пыжова. «Ж. аналит. химии», 23, 1564 (1968).

Интерметаллиды циркония и их влияние на коррозионные свойства циркониевых сплавов

А. И. ЕВСТУХИН, И. И. КОРОБКОВ, В. В. ОСИПОВ

УДК 620.193.23:669.296

Важнейшие для ядерной энергетики циркониевые сплавы содержат обычно легирующие добавки олова, железа, никеля, меди, молибдена и других элементов [1]. Эти добавки имеют малую растворимость в α -цирконии и образуют с ним соединения типа $ZrFe_2$, Zr_2Ni , Zr_4Sn и др. Свойства сплавов циркония сильно зависят от свойств образующихся интерметаллидов, их количества и характера распределения [2].

В чистом виде и оценить влияние их на коррозионные свойства сплавов циркония в воде и паре высоких параметров.

Наряду с этим подробно исследовались микротвердость при различных температурах и структура интерметаллидов, а также состав образующихся окисных пленок.

Материалы и методика исследования

Циркониевые интерметаллиды получали из иодидного циркония и соответствующих

В связи с этим была поставлена задача — изучить свойства включений интерметаллидов