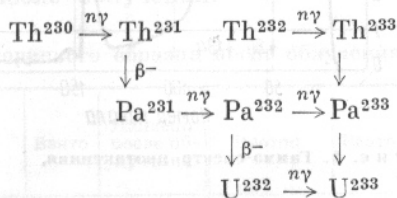


## Исследование накопления изотопов протактиния и урана при облучении $\text{Th}^{230}$ и $\text{Th}^{232}$ тепловыми нейтронами

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

УДК 621.039.554

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



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

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/см<sup>2</sup>·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  $\text{Th}^{230}$  и 13,45 мг  $\text{Th}^{232}$ , 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/см<sup>2</sup>. Через 76 дней после облучения препарат растворяли при нагревании в 20 мл 8 н.  $\text{HNO}_3$  в присутствии 0,5 мл 0,05 н.  $\text{HF}$ . Общий вес раствора образца составлял 20,03 г, а суммарная  $\alpha$ -активность —  $5,22 \cdot 10^9$  расп/мин.

Для извлечения протактиния и отделения его от изотопов урана, тория, осколков, дочерних продуктов распада  $\text{U}^{232}$  применяли силикагель со следующими характеристиками: удельный объем пор 0,933 см<sup>3</sup>/г, удельная поверхность 264/388 м<sup>2</sup>/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.  $\text{HNO}_3$  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.  $\text{HNO}_3$ . 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  $\alpha$ -излучения протактиниевой фракции исследовали с помощью альфа-спектрометра с кремниевым детектором. Сцинтилляционный счетчик  $\alpha$ -частиц применялся для определения концентрации  $\text{Ra}^{231}$ . Мишени приготавливали весовым методом. Содержание  $\text{Ra}^{233}$  определяли путем  $\gamma$ -спектрометрического анализа. Дополнительный контроль фильтрата и промывных вод на содержание протактиния осуществляли также  $\gamma$ -спектрометрическим методом путем регистрации  $E_\gamma = 0,311$  Мэв от  $\text{Ra}^{233}$ .

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  $\alpha$ -частиц с энергиями 5,01; 4,94

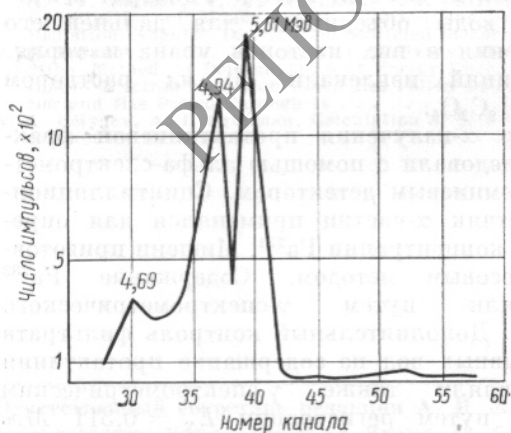


Рис. 1. Альфа-спектр протактиния.

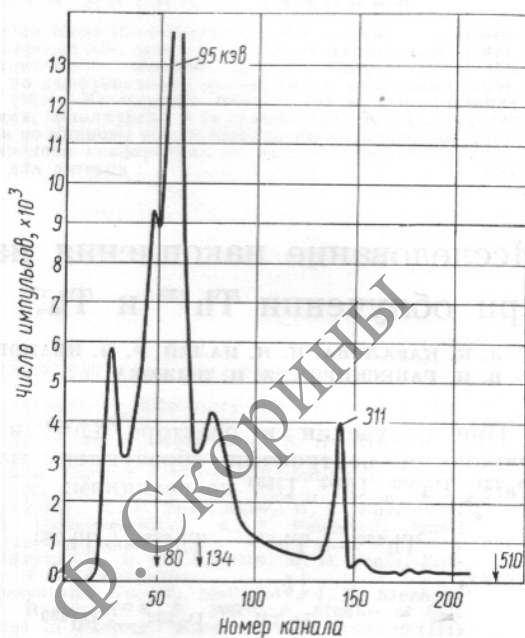


Рис. 2. Гамма-спектр протактиния.

и 4,69 МэВ подтверждает радиохимическую чистоту выделенного изотопа  $Ra^{231}$ . На рис. 2 приведен  $\gamma$ -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  $\gamma$ -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

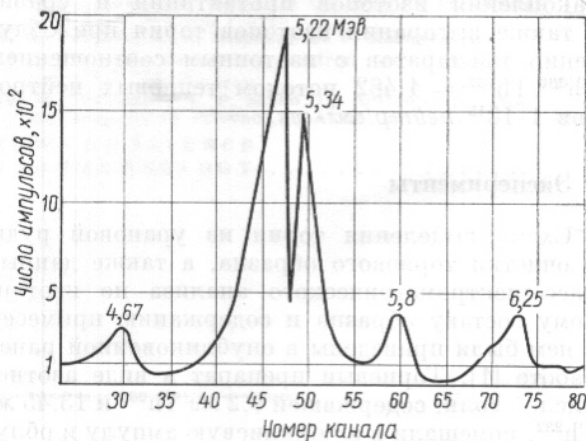


Рис. 3. Альфа-спектр урано-ториевой фракции.

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  $\alpha$ -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  $1 \times 10^{15}$  нейтр/см<sup>2</sup>·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/см<sup>2</sup> × 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  $\alpha$ -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