

ВИЗНАЧЕННЯ ВИХОДІВ УЛАМКІВ ПОДІЛУ З ВИКОРИСТАННЯМ ПРОЦЕСУ СОРБЦІЇ

Г. В. Васильєва¹, В. С. Куць¹, В. А. Пилипченко², А. П. Осипенко²

¹ Інститут сорбції і проблем ендоекології НАН України, Київ, Україна

² Ужгородський Національний Університет, кафедра фізики ядра і елементарних частинок, Ужгород, Україна

Досліджувалось вилучення ізотопів йоду із суми продуктів поділу ^{235}U у водному розчині шляхом процесу сорбції з використанням вугільного сорбенту СКС. Одержано значення коефіцієнтів сорбції у діапазоні 0,7 - 0,9. Показано можливість визначення незалежного виходу ^{135}Xe шляхом порівняння активності ^{135}Xe у розчині, профільтованому крізь сорбент СКС, з активністю відповідного контрольного розчину. Числове значення визначеного таким чином незалежного виходу ^{135}Xe в реакції поділу ^{235}U тепловими нейтронами ($0,5 \pm 0,15$) добре узгоджується із значеннями, отриманими іншими методами. Використання сорбції продуктів поділу може мати важливе значення в екології та при дослідженнях вихідних каналів поділу ядер.

1. Вступ

Неослабний інтерес науковців до систематичного вивчення особливостей процесу поділу важких ядер вимагає постійного вдосконалення методів його експериментального дослідження. Це, зокрема, стосується вивчення енергетичних залежностей незалежних виходів уламків поділу.

Незалежні виходи уламків поділу безпосередньо пов'язані з найбільш складною для експериментального вивчення стадією поділу – стадією утворення й відокремлення уламків. Перспективними є дослідження залежності величини таких виходів від енергії збудження ядра перед поділом у реакціях фотоподілу [1, 2]. Однак у цьому напрямі є певні труднощі, пов'язані з низькими значеннями перерізів реакцій фотоподілу та відносно малими величинами незалежних виходів. У широко розповсюдженій γ -спектрометричній методиці вимірювання виходів уламків поділу до цього додається необхідність виділення γ -лінії уламка, який досліджується, з великої кількості γ -квантів, випромінюваних іншими уламками.

Для визначення величини незалежного виходу γ -спектрометричним методом потрібно одночасно вимірювати інтенсивності γ -ліній як досліджуваного уламка, так і його попередника. При цьому слід враховувати залежність ефективності спектрометра від енергії, а також залежність від енергії γ -квантів поправок на їх самопоглинання у зразках та інших поправок.

Серед уламків поділу ^{235}U нейтронами помітне місце займає утворення ^{135}Xe . Кумулятивний вихід цього уламка значний, крім того, сам уламок дуже інтенсивно поглинає теплові нейтрони (переріз досягає мільйонів барн) і тому суттєво впливає на перебіг у часі ланцюгової реакції поділу в ядерних реакторах. Це вимагає детального вивчення всіх аспектів, пов'язаних із формуванням таких уламків.

Експериментальне вивчення незалежних виходів може здійснюватись різними методами: методом мас-спектрометричного виділення заданих первинних уламків; виділенням конкретних уламків та їх попередників хімічними методами; за допомогою вимірювання спектрів характеристичного γ -випромінювання уламків та інші.

У γ -спектрометричній методиці незалежний вихід ^{135}Xe можна вивчати шляхом аналізу спектрів γ -випромінювання ^{135}Xe і його попередника ^{135}I , або по формі кривої розпаду уламків за положенням максимуму кумулятивного виходу. Останній метод вимагає тривалих вимірювань кривої розпаду, оскільки максимум у кривій розпаду слабо виражений. При залученні в методику визначення незалежного виходу γ -випромінювання попередника ^{135}Xe виникають неточності, пов'язані з урахуванням енергетичної залежності ефективності детектора та поправок на самопоглинання для різних γ -ліній.

Відомо, що радіоактивні ізотопи можна концентрувати методом сорбції [2, 3]. У даній роботі аналізується можливість використання процесу сорбції для γ -спектрометричного визначення незалежного виходу уламків ^{135}Xe .

2. Сорбційне вилучення ізотопів йоду – уламків поділу

Загальні уявлення про стан і поведінку радіонуклідів у розчині дозволяють зробити висновок про те, що утворені при поділі ядра ^{235}U уламки ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I будуть існувати у водному розчині, переважно у вигляді аніону I^- [5]. Імовірність зустрічі двох атомів йоду зменшується із зменшенням концентрації, і при вмісті в розчинах порядку 10^{-14} моль/л ця ймовірність практично дорівнює нулю,

що виключає асоціювання уламків між собою. Аніон йоду має достатньо великі розміри. Він слабо гідратує й поляризує оточуючі молекули води.

На основі даних [5 - 9] для вилучення ізоотопів йоду з водних розчинів було використано синтетичний органічний сорбент марки СКС, насичений молекулярним йодом (метод ізоотопного обміну). Сорбційні процеси, що ґрунтуються на ізоотопному обміні, мають найбільшу потенційну вибірковість і часто здійснюються з використанням йодовмісних сполук [8].

Сорбент СКС відрізняється яскравою гідрофобністю поверхні. Це є наслідком його високої чистоти. Сорбент практично не має мінеральних компонентів у вигляді оксидів металів, а також різноманітних домішкових гетероатомів [5, 9]. Вузькі пори, властиві вугіллю СКС, мають високий адсорбційний потенціал. Аніонообмінні властивості вивченого вугілля не впливають на адсорбційну ємність по відношенню до молекулярного йоду, визначальне значення має пориста структура адсорбенту. Процес відбувається по механізму фізичної сорбції.

Методика модифікування сорбенту СКС молекулярним йодом здійснювалась шляхом його контактування із розчином молекулярного йоду в йодистому калії протягом доби. Взаємодія відбувалась у статичних умовах методом окремих наважок. Маса сорбенту становила 0.1 г, об'єм досліджуваного розчину – 10 мл, вихідна концентрація йоду – 0.05 н. Концентрацію йоду, що залишився в розчині після взаємодії із сорбентом визначали титриметрично [5]. У результаті утворився сорбент із вмістом молекулярного йоду 0.0491 г-екв/г. Даний сорбент промивали дистильованою водою й відразу ж використовували для проведення процесу ізоотопного обміну.

Для здійснення ізоотопного обміну розчин із наявними в ньому радіонуклідами ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I , концентрація яких складала 10^{-14} - 10^{-15} моль/л, пропускали через шар модифікованого сорбенту СКС із швидкістю 1 кр/с. Дослідження проводили в динамічних умовах, при рН = 7, об'єм досліджуваного розчину становив 20 - 25 мл, маса сорбенту 1 г.

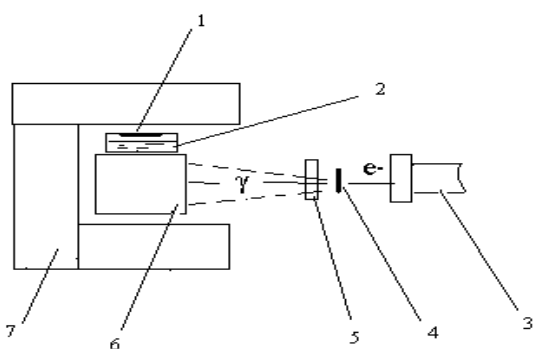


Рис. 1. Схема отримання розчину з накопиченими в ньому продуктами поділу: 1 - мішень: окис ^{235}U ; 2 - посудина із розчином; 3 - мікротрон (прискорювач електронів М-10); 4 - гальмівна мішень мікротрон; 5 - поглинач вторинних електронів; 6 - берилієва мішень; 7 - поліетиленові блоки.

з сорбентом, та порівняння їх із спектром від контрольного розчину. Вміст ^{133}I та ^{135}I визначався за інтенсивністю максимумів у спектрі при енергіях 530 і 1131 кеВ відповідно [10]. У максимум при 530 кеВ згідно з літературними даними вносять вклад близько 15 уламків. В умовах даного експерименту суттєвий вклад, крім ізоотопу йоду, можуть дати ще три уламки ^{83}Br , ^{140}Ba , ^{142}Nd .

Вклад у максимум ізоотопу йоду розраховувався за відомими даними про виходи уламків з реакції. При цьому вимірювання спектра проводилось при часах витримки, при яких вклад ізоотопу йоду мав бути максимальним. Це зменшувало похибку, спричинену неточністю значень виходів уламків, що заважають. Максимум при енергії γ -квантів 1131 кеВ практично повністю зобов'язаний ^{135}I . У результаті аналізу γ -спектрів в одній із експозицій були одержані коефіцієнти вилучення ізоотопів йоду, наведені в табл. 1. Характер відповідних ділянок γ -спектрів розчину до і після взаємодії з сорбентом показують значне вилучення всіх ізоотопів йоду (рис. 2), що видно також за даними табл. 1.

Відмінності в коефіцієнтах сорбції ізоотопів йоду зумовлені статистичними похибками вимірювань. За результатами даної роботи модифікований СКС забезпечує ≈ 70 - 90 % вилучення радіойоду. Але в усіх випадках спостерігалось залишкова активність елемента.

Розчин продуктів поділу ^{235}U утворювався з використанням гальмівного пучка γ -квантів у мікротроні УжНУ, як показано на рис. 1 [3, 4].

Електрони, прискорюючись у мікротроні 3 (див. рис. 1), потрапляли на гальмівну мішень мікротрона 4 і випромінювали γ -кванти, γ -кванти бомбардували берилієву мішень 6, спричиняючи реакцію $^9\text{Be}(\gamma, n)^8\text{Be}$. Утворені нейтрони сповільнювались у берилієвих мішенях та в поліетиленових блоках 7 до теплових і, потрапляючи на уранову мішень 1, викликали реакцію поділу: $^{235}\text{U} + n \rightarrow$ продукти поділу. Частина уламків протягом 1 - 2 год акумулювалась у водному чи іншому колекторі 2. Сорбція відбувалась у динамічних умовах при рН ≈ 6 - 7. Це забезпечило максимальне вилучення радіойоду із розчинів. Визначення ступеня вилучення радіойоду відбувалось шляхом зняття γ -спектрів розчину після контакту

Таблиця 1. Експериментальні значення коефіцієнтів сорбції (ступенів вилучення ізоотопів йоду – відношення концентрації радіонукліда після сорбції до початкової концентрації)

Ізотоп	^{132}I	^{133}I	^{134}I	^{135}I
Енергія γ -квантів, кеВ	667,7 772,6	529,9	847; 884	1131
Коефіцієнт сорбції	$0,80 \pm 0,1$	$0,85 \pm 0,035$	$0,92 \pm 0,05$	$0,90 \pm 0,07$

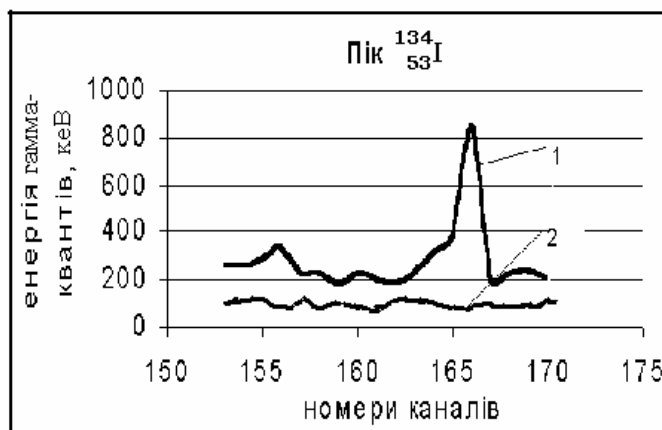


Рис. 2. Ділянка γ -спектра з максимумом, основний вклад у який дають ізоотоп ^{134}I :
1 - спектр розчину до взаємодії із сорбентом (спектр із контрольного зразка);
2 - спектр розчину після взаємодії розчину із сорбентом.

3. Використання процесу сорбції для визначення незалежних виходів.

У даній роботі було проаналізовано можливість використання процесу сорбції та ізоотопного обміну для γ -спектрометричного визначення незалежного виходу уламків ^{135}Xe шляхом порівняння інтенсивності гамма-лінії ^{135}Xe у спектрі від контрольного розчину та від розчину, з якого здійснено видалення уламків ^{135}I у процесі динамічної сорбції. В основу роботи покладено припущення [8] про те, що при контактуванні двох систем у динамічних умовах, одна з яких містить радіоактивні ізоотопи йоду (досліджуваній розчин), а інша – стабільні (сорбент насичений молекулярним йодом), ізоотопний обмін відбуватиметься таким чином, що значна частка ^{135}I перейде в сорбент. Підтверджують таке припущення два фактори: по-перше, що концентрація стабільних ізоотопів йоду набагато порядків більша, ніж ізоотопів ^{135}I ; по-друге, динамічні умови процесу забезпечують швидке проходження ізоотопного обміну ще до встановлення рівноваги, результатом якого повинно бути максимальне вилучення ^{135}I .

Попередники ^{135}I у ланцюгу β -розпадів короткоживучі і їх наявність можна не враховувати. Оскільки кумулятивний вихід ^{135}I очікується значно більшим за незалежний вихід ^{135}Xe , інтенсивність

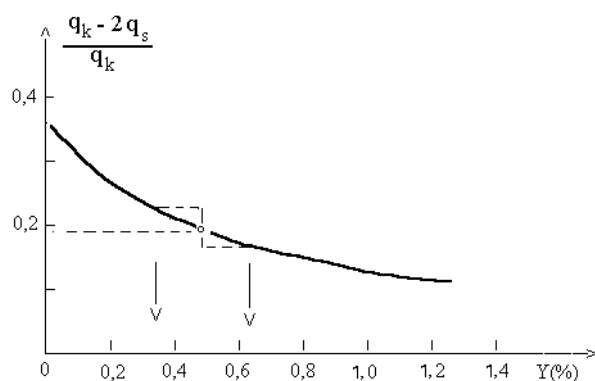


Рис. 3. Порівняння експериментального відношення V_{exp} ($V_{\text{exp}} = 0,19 \pm 0,035$) з розрахованою залежністю $V(Y)$ при $K_I = 0,75$, $K_{\text{Xe}} = 0,5$ та часу охолодження: к-проби 276 хв і s-проби 328,5 хв. Стрілки показують розкид можливих значень Y , зумовлений експериментальними похибками.

лінії ксенону після припинення опромінення зразка наростає, досягаючи максимуму при часі розпаду (“охолодження”) кілька сотень хвилин і далі спадає, наближуючись до форми кривої розпаду ^{135}Xe . Положення максимуму кривої розпаду залежить від величини незалежного виходу ксенону. Якщо розчин-накопичувач уламків відразу після припинення опромінення пропустити через шар сорбенту, який селективно поглинає ^{135}I , мало впливаючи на вміст ^{135}Xe ; виміряна залежність від часу охолодження інтенсивності γ -лінії ^{135}Xe суттєво змінить свою форму. Очевидно, що відношення інтенсивностей γ -лінії ^{135}Xe для контрольного розчину (q_k) і розчину, який пропустили через шар сорбенту (q_s), буде також залежати від величини незалежного виходу ^{135}Xe . Ще чутливішим до величини незалежного виходу ^{135}Xe є

відношення $V = (q_k - 2q_s)/q_k$. Крива на рис. 3 демонструє модельний розрахунок такого відношення з врахуванням часу опромінення та часових характеристик процесу вимірювання. Цей факт був використаний для експериментального визначення незалежного виходу ^{135}Xe .

Багатокомпонентний розчин уламкових елементів одержувався шляхом нагромадження уламків поділу з реакції $^{235}\text{U}(n, f)$ у водному колекторі. Частина розчину пропускала через фільтр (s-проба), що містив вугільний сорбент: стирол дивінілбензоатний співполімер (СКС), інша частина розчину служила контрольною пробєю. Вміст ^{135}Xe визначався по інтенсивності γ -лінії 249,7 кеВ. Спектр γ -квантів вимірювався напівпровідниковим спектрометром, як і в [3, 4]. Для визначення вмісту попередника (^{135}I) вимірювалась інтенсивність γ -лінії 1131 кеВ. У табл. 2 наведено типовий приклад вимірних інтенсивностей ліній.

Таблиця 2. Експериментальні значення сум імпульсів у максимумах при енергіях 249,7 та 1131 кеВ
Час нагромадження уламків 130 хв

Енергія, кеВ	Час охолодження, хв	Час вимірювання, хв	Сума імпульсів у максимумі	Похибка суми	Тривалість сорбції, хв.
249	276	50	611	40	0
249	329	41	111	11	13,5
1131	175	30	141	13	0
1131	329	41	30	6	13,5

Розраховані для цієї експозиції коефіцієнти вилучення для йоду і ксенону з використанням значень інтенсивності лінії йоду та ксенону виявились рівними $0,75 \pm 0,05$ та $0,5 \pm 0,06$ відповідно.

При цьому необхідно враховувати вплив на значення коефіцієнтів сорбції та експериментальне відношення V_{exp} вкладу від заважаючих уламків. За літературними даними [10], з майже двох десятків уламків, які випромінюють γ -кванти з енергіями, близькими до 250 кеВ, у випадку реакції $^{235}\text{U}(n, f)$ суттєву роль відіграють ^{142}Ba , ^{138}Xe та ^{92}Sr . Перші два мають достатньо малі періоди напіврозпаду (10,3 і 14,2 хв) і при більших за 100 хв охолодженнях не проявляються. Для наведених експериментальних даних слід враховувати лише вклад ^{92}Sr (період напіврозпаду 162,6 хв, енергія квантів 242 кеВ, квантовий вихід лінії близько 3 %, кумулятивний вихід уламка 6,1 %). Тому було проведено вимірювання інтенсивності лінії ксенону при семи значеннях часу охолодження та визначено частку вкладу в експериментальний максимум ^{135}Xe шляхом аналізу залежності інтенсивності від часу охолодження [1, 4]. Після введення поправки на вклад заважаючих уламків, основним серед яких був ^{92}Sr , було одержано експериментальне значення відношення V : $V_{\text{exp}} = 0,19 \pm 0,035$.

На рис. 3 наведено результат модельних розрахунків залежності відношення V від величини незалежного виходу ксенону при кумулятивному виході попередника 6,4 % та при врахуванні у модельних розрахунках наявності вилучення ксенону. Порівняння експериментального значення V з розрахованою залежністю дає значення незалежного виходу ^{135}Xe : $Y = 0,50 \pm 0,15$. Це значення у межах похибки збігається з відомим значенням $0,55 \pm 0,05$. [11, 12]. Відзначимо, що експериментальне відношення може містити систематичну похибку, пов'язану з можливою неоднозначністю апроксимації вкладу заважаючих уламків.

Навіть при цьому методика може дати об'єктивні результати при вивченні відносних змін незалежного виходу при зміні енергії збудження подільного ядра або при зміні типу частинок, що викликають поділ ядер. Зокрема, пропонується методика експериментального визначення незалежних виходів може бути корисна для дослідження енергетичної залежності формування уламків ^{135}Xe при фотоподілі ядер.

Важливою перевагою пропонованої методики є те, що результат досягається шляхом вимірювання однієї γ -лінії. Деяким недоліком є необхідність точного знання коефіцієнта вилучення йоду, ксенону та заважаючих уламків. У роботі [2] для визначення незалежних виходів уламків ксенону запропонована оригінальна методика, у якій також використано відбір уламків за допомогою методу сорбції. Наша експериментальна методика значно простіша.

Точність визначення незалежного виходу може бути вищою при збільшенні потоку налітаючих частинок або при використанні сорбенту (чи умов сорбції) з вищою селективністю йоду.

Автори висловлюють подяку О. Г. Окунєву і О. М. Фрадкіну за допомогу у вимірюваннях, В. Лямаєву за розробку програмного забезпечення, Р. Плекану та І. В. Хімічу за цінні поради при обговоренні результатів.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Бохінюк В.С., Осипенко А.П., Пилипченко В.А. та ін. Структура енергетичних залежностей виходів уламків фотоподілу поблизу бар'єру поділу // Наук. вісн. Ужгород. ун-ту. Сер. Фізика. - 1998. - № 3. - С. 30 - 32.
2. Gangrsky Yu.P., Mishinsky G.V. et al. Independent yields of Kr and Xe isotopes for the photofission of heavy nuclei // OURU, Dubna E15-2002. - 20 p.
3. Васильєва Г.В., Осипенко А.П. Використання різних типів вугільних сорбентів для концентрування та радіоаналітичного визначення йоду // Вісн. Ужгород. ун-ту. Сер. Фізика. - 2001. - № 10. - С. 111 - 114.
4. Васильєва Г.В., Стрелко В.В., Осипенко А.П. Дослідження сорбції мікрокількостей радіонуклідів із багатокомпонентних розчинів // Наук. вісн. Ужгород. ун-ту. Сер. Хімія. - 2000. - № 5. - С. 130 - 133.
5. Волков А.А., Филатов Э.С., Несмеянов Ан.С. Состояние радиоиода в формиатных метанольных растворах // Радиохимия. - 1974. - Т. 16, № 5. - С. 629 - 634.
6. Пузий А.М., Картель Н.Т., Стрелко В.В. Оценка сорбционной способности новых синтетических активных углей при извлечении иода из растворов // УХЖ. - 1984. - Т. 50, № 4. - С. 380 - 383.
7. Мельников В.В., Москвин Л.Н. и др. Выделение радиоактивного иода из водных растворов на пористых металлических сорбентах // Радиохимия. - 1986. - Т. 27, № 2. - С. 208 - 211.
8. Игнатов В.П., Коломейцева И.В. Выделение иода-131 из воды с использованием изотопного обмена с иод-крахмальным соединением // Радиохимия. - 1990. - Т. 32, № 5. - С. 114 - 117.
9. Стрелко В.В., Коровин Ю.Ф. и др. Структурно-сорбционные характеристики новых синтетических углей марки СКС // УХЖ. - 1984. - Т. 50, № 11. - С. 1157 - 1162.
10. Lederer C.M., Shirley V.S. Table of Isotopes / 7th edition. - New York - Chichester - Brisbane - Toronto: John Wiley & Sons, 1978. - 1540 p.
11. Кибкало Ю.В. Феноменологическое описание независимых выходов осколков деления ^{235}U тепловыми нейтронами. - К., 1987ю. - 12 с. - (Препр. / АН УССР. Ин-т ядерных исслед.)
12. Amiel S., Feldstein H. A systematic odd-even effect in the independent yield distribution of nuclides from thermal-neutron-induced-fission of ^{235}U // Physics and Chemistry of Fission. - Vienna: IAEA, 1974. - Vol. 2. - P. 65 - 94.

DETERMINATION OF FISSION FRAGMENT YIELDS USING THE SORPTION PROCESS

H. V. Vasylyeva, V. S. Kouts, V. A. Pylypchenko, A. P. Osypenko

The separation of iodine isotopes from the sum of ^{235}U fission products by the sorption process from water solution with use coal sorbent SKS was investigated. The sorption coefficient values in range 0,7 - 0,9 was obtained. The possibility of ^{135}Xe independent yield determination by comparison of ^{135}Xe activity in solution filtered throat SKS sorbent with activity control solution is shown. The obtained value independent ^{135}Xe yield, $0,5 \pm 0,15$, is in good agreement with those obtained by other methods. The using of the sorption process of fission fragment may have a significant importance in ecology and for exit nuclear fission channels investigation.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЫХОДОВ ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ПРОЦЕССА СОРБЦИИ

Г. В. Васильева, В. С. Куць, В. А. Пилипченко, А. П. Осипенко

Исследовалось извлечение изотопов йода из суммы продуктов деления ^{235}U в водном растворе путем процесса сорбции с использованием угольного сорбента СКС. Получены значения коэффициентов сорбции в диапазоне 0,7 - 0,9. Показана возможность определения независимого выхода ^{135}Xe путем сравнения активности ^{135}Xe в растворе, профильтрованном через сорбент СКС, с активностью соответствующего контрольного раствора. Численное значение определенного таким образом независимого выхода ^{135}Xe в реакции деления ^{235}U тепловыми нейтронами ($0,5 \pm 0,15$) хорошо согласуется со значениями, полученными другими методами. Использование сорбции продуктов деления может иметь существенное значение в экологии и при исследовании выходных каналов реакции деления ядер.