

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P12-97-359

С.Н.Дмитриев, О.Д.Маслов, А.В.Сабельников, А.Г.Белов

ПОЛУЧЕНИЕ ^{236}Pu В РЕАКЦИИ $^{237}\text{Np} (\gamma, n)$

Направлено в журнал «Радиохимия»

1997

Получение ^{236}Pu в реакции $^{237}\text{Np} (\gamma, n)$

^{236}Pu был получен в реакции $^{237}\text{Np} (\gamma, n) ^{236m}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$ на ускорителе электронов — микротроне МТ-25 ФЛЯР. Плутоний выделяли из облученной мишени с использованием анионообменной хроматографии. Соотношение активностей $^{236}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$ было равно $1/\leq 1 \cdot 10^{-4}/1 \cdot 10^{-5}/2 \cdot 10^{-6}/< 1 \cdot 10^{-4}$ Бк/Бк.

Реакция $^{237}\text{Np} (\gamma, n)$ является наиболее оптимальной для получения ^{236}Pu с изотопной чистотой $10^{-6} + 10^{-7}$ Бк/Бк.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им.Г.Н.Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1997

Перевод авторов

Dmitriev S.N. et al.

P12-97-359

Production of ^{236}Pu in the $^{237}\text{Np} (\gamma, n)$ Reaction

The ^{236}Pu was obtained in the $^{237}\text{Np} (\gamma, n) ^{236m}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$ reaction at the electron accelerator MT-25 microtron of the FLNR. Plutonium was isolated from the irradiated target by using the anion-exchange chromatography. The ratio $^{236}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$ was estimated equal to $1/\leq 1 \cdot 10^{-4}/1 \cdot 10^{-5}/2 \cdot 10^{-6}/< 1 \cdot 10^{-4}$ Bq/Bq.

The $^{237}\text{Np} (\gamma, n)$ reaction is the most optimal one for production of ^{236}Pu having the isotopic purity of $10^{-6} + 10^{-7}$ Bq/Bq.

The investigation has been performed at the Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Одним из актуальных направлений современной радиоэкологии является развитие ультрочувствительных методов анализа плутония в биологических объектах (продукты питания и жизнедеятельности человека) и природных образцах (почвы, воды и т.д.) [1-4]. Особый интерес представляет определение изотопных отношений $^{239, 240}\text{Pu}$ к ^{238}Pu , позволяющих идентифицировать источник загрязнения исследуемых объектов (ядерные взрывы, аварии на АЭС и др.) [5, 6, 7].

Развитие этих работ предусматривает использование в качестве трассеров препаратов ^{236}Pu ($T_{1/2}=2,858$ л., $E_{\alpha}=5,77$ МэВ (72,4%) и $E_{\alpha}=5,72$ МэВ (27,6%)) с изотопной чистотой (Бк/Бк): по $^{238}\text{Pu} \approx 10^{-4}$ и по $^{239}\text{Pu} \approx 10^{-6}$.

Основными реакциями получения ^{236}Pu являются:

1. $^{238}\text{U}(\text{p}, 3\text{n})^{236\text{m}}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$, [8].
2. $^{235}\text{U}(\alpha, 3\text{n})^{236}\text{Pu}$, [9, 10].
3. $^{235}\text{U}(\text{d}, \text{n})^{236\text{m}}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$, [9, 10, 11].
4. $^{236}\text{U}(\text{p}, \text{n})^{236\text{m}}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$, [12].
5. $^{237}\text{Np}(\text{p}, 2\text{n})^{236}\text{Pu}$, [13].

Значения сечений образования ^{236}Pu в них изменяется в пределах 5-15 мб, а изотопная чистота целевого радионуклида из-за протекания конкурирующих реакций (хл, рхп и др.) не превышает 10^{-3} Бк/Бк (за исключением реакции 4). Кроме того, при взаимодействии ^{235}U , ^{238}U , ^{237}Np с протонами, дейтонами и ^4He -ионами сечения деления ядер из возбужденного состояния составляют ≈ 1 б, то есть образование одного ядра ^{236}Pu сопровождается образованием ≈ 100 ядер осколочных радиоактивных элементов, что существенно усложняет радиохимическое выделение ^{236}Pu из облученной мишени.

Получение ^{236}Pu возможно также в реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, \text{n})^{236\text{m}}\text{Np} \rightarrow ^{236}\text{Pu}$. В работе [14] мишень ^{237}Np (8 мг) облучалась тормозным излучением с энергией 20 МэВ от платинового конвертора линейного электронного ускорителя. В течение первых 8 часов ток электронов составлял 20 мкА и в последующие 10 часов - 40 мкА. В результате радиохимического разделения было получено 740 Бк ^{236}Pu , что соответствовало выходу 0,16 Бк/мкА·ч·мг. Объяснить причины столь низкого выхода ^{236}Pu достаточно трудно. Поток γ -квантов в

работе не оценивался, не приведена геометрия облучения, не определен радиохимический выход плутония из облученной мишени. Согласно же данным Вейзеера и др. [15], сечение $^{237}\text{Np}(\gamma, \text{n})$ -реакции в достаточно широком интервале энергий γ -квантов (10-14 МэВ) составляет от 100 до ≈ 150 мб, что в 5-10 раз превышает значения сечений приведенных выше реакций 1-5. Следует особо отметить, что при облучении ^{237}Np γ -квантами отсутствуют каналы реакций, приводящие к образованию $^{238, 239}\text{Pu}$, т.е. изотопная чистота препаратов ^{236}Pu будет определяться только радиохимической чистотой исходного ^{237}Np . Сечение деления ^{237}Np из возбужденного γ -квантами состояния составляет 200-300 мб. т.е. отношение $\sigma(\gamma, \text{f})$ к $\sigma(\gamma, \text{n})$ равно ≈ 2 , что существенно ниже, чем в реакциях с заряженными частицами.

Вышеизложенное позволяло рассматривать $^{237}\text{Np}(\gamma, \text{n})$ - реакцию в качестве одной из наиболее оптимальных для получения изотопно чистых препаратов ^{236}Pu [16].

Целью работы являлась разработка методики получения высокочистого изотопа плутония-236 в реакции ^{237}Np с гамма-квантами на компактном ускорителе электронов - микротроне МТ-25 ЛЯР им.Г.Н.Флерова.

Экспериментальная часть

Мишени из ^{237}Np

Исходный ^{237}Np (14 мг) очищали от примесных изотопов $^{236, 238, 239, 240}\text{Pu}$ и ^{233}Pa на колонке ($\varnothing 6$ мм, $L=120$ мм) с сильноосновным анионитом Wofatit SBW, предварительно переведенным в Cl^- -форму. Сорбцию осуществляли из 9М раствора HCl (25 мл). Элюирование Pu и Pa проводили раствором 9М $\text{HCl} + \text{NH}_4\text{I}$ (20 мл), Np - 2М HCl (25 мл). Скорость элюирования составляла 1 мл/мин. Из аликвоты 2М HCl раствора электролитически осаждали ^{237}Np на диски из нержавеющей стали и анализировали на $\text{Si}(\text{Au})$ -детекторе. Содержание изотопов плутония (Бк/мг ^{237}Np) было определено равным: ^{236}Pu - 0,3; ^{238}Pu - 0,7; $^{239, 240}\text{Pu}$ - 0,06. Очищенный ^{237}Np переводили в форму оксида ($^{237}\text{NpO}_2$) и использовали для изготовления двух мишеней весом (по ^{237}Np) 1,0 и 10,0 мг.

В случае мишени массой 1,0 мг ^{237}Np заданное количество оксида нептуния растворяли в HNO_3 и с помощью капилляра послойно (10 слоев, каждый из которых упаривали под лампой) наносили на дно цилиндрического алюминиевого контейнера

диаметром 8 мм и высотой 5 мм. Затем контейнер закрывали алюминиевой крышкой толщиной 0,1 мм.

В случае мишени массой 10,0 мг оксид нептуния (IV) помещали в алюминиевый цилиндрический контейнер. Контейнер размещали в центре алюминиевого держателя, открытого с одной стороны. Открытую сторону держателя закрывали алюминиевой фольгой толщиной 50 мкм, которую плотно приклеивали к поверхности держателя.

Выбор размера мишени (\varnothing 8 мм) был сделан на основании результатов серии предварительных экспериментов, в которых с помощью медных мониторов проводили измерение интенсивности распределения гамма-пучка в радиальной плоскости.

Облучение

Мишень ^{237}Np массой 1 мг облучали фотонами микротрона МТ-25 в течение 10 часов при токе электронов 15 мкА, а массой 10 мг – 100 часов при токе электронов 20 мкА и максимальной энергии 25 МэВ [17].

Эксперименты проводили с использованием разработанного нами мишенного блока, позволяющего устанавливать мишени непосредственно за W-конвертором, что обеспечивает облучение в пучках γ -квантов с интенсивностью, близкой к максимальной. Схема облучения ^{237}Np представлена на рис. 1.

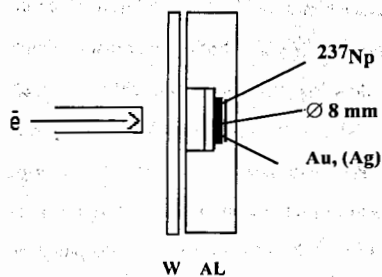


Рис. 1. Схема облучения ^{237}Np .
облучаемого образца не превышала 100 °С

Конвертором служил вольфрамовый диск толщиной 2 мм ($3,86 \text{ г/см}^2$). Перед W-конвертором располагали коллиматор пучка электронов \varnothing 8 мм. Охлаждение конвертора осуществляли проточной водой и мишенный держатель (алюминий) плотно прикрепляли к охлаждаемой части конструкции. При облучении мишень дополнительно охлаждали воздухом. Температура в области расположения

Выделение ^{236}Pu из облученной мишени ^{237}Np

По окончании облучения мишени “охлаждали” в течение 15–30 дней до полного распада нептуния-236m и короткоживущих γ - и β -излучателей и затем растворяли в концентрированной азотной кислоте.

Разделение продуктов реакции проводили методом анионообменной хроматографии на анионите Wofatit SBW с зернистостью 200 меш. Объем колонки составлял $1,5 \text{ см}^3$ (\varnothing 6мм, L=60мм). Разделение проводили в две стадии:

На первой стадии производили отделение от основного количества материала мишени (Np). Для этого смыв с мишени упаривали досуха, сухой остаток растворяли в растворе 9M HCl+0,1M NH₄I и выдерживали при комнатной температуре в течение часа. При этом Np переходил в форму Np(IV), Pa – Pa(IV), Pu – Pu(III). Далее раствор переносили на колонку, которую затем промывали 10 колоночными объемами раствора 9M HCl+0,1M NH₄I. Скорость пропускания растворов составляла 1мл/мин·см². В данных условиях Np(IV) сорбировали на смоле, а Pu(III) и Pa(IV) оставляли в растворе.

Выделение плутония производили на второй стадии очистки. Раствор после первой стадии очистки, содержащий Pu, Pa, продукты деления и следы Np, упаривали досуха и сухой остаток растворяли в растворе 7,5M HNO₃+0,1M NaNO₂. Раствор термостатировали при температуре 95 °С в течение часа, при этом плутоний, протактиний и нептуний переходили, соответственно, в форму Pu(IV), Pa(V) и Np(IV). Далее раствор переносили на анионообменную колонку с анионом Wofatit SBW, предварительно переведенным в NO₃⁻-форму пропусканием 10 колоночных объемов раствора 7,5M HNO₃+ 0,1M NaNO₂. Нептуний (IV) и плутоний (IV) сорбировали на смоле, а Pa и ПД оставляли в растворе. Колонку промывали 10 колоночными объемами раствора 7,5M HNO₃+0,1M NaNO₂ и затем, для перевода смолы в Cl⁻-форму – 10 колоночными объемами раствора 9M HCl. После этого Pu элюировали раствором 9M HCl+0,1M NH₄I в виде Pu(III), а следы Np – раствором 2M HCl в виде Np(IV). Скорость пропускания всех растворов составляла 1мл/мин·см². Схема выделения ^{236}Pu из облученных мишеней представлена на рис.2.

Сепарация изотопов плутония

Для определения изотопной чистоты полученных препаратов ^{236}Pu проводили сепарацию изотопов плутония на электромагнитном масс-сепараторе YASNAPP-2 [18].

Использовали высокотемпературный ионный источник с поверхностной ионизацией. Сечение пучка в фокальной плоскости коллекторной камеры было 1 мм по вертикали и 2 мм по горизонтали. Ионы собирали на алюминизированную майларовую пленку длиной 50 мм и шириной 11 мм. Перед разделением в качестве трассеров добавляли $^{235,238}\text{U}$, для того чтобы идентифицировать области фольги, содержащие различные изотопы плутония. Майларовую фольгу после разделения изотопов разрезали на полоски шириной 10 мм и анализировали на Si(Au)-детекторе.

Спектрометрия ^{236}Pu и ^{237}Np

Гамма-спектрометрические измерения различных фракций на стадии радиохимического выделения и конечного препарата проводили на Ge(Li)-детекторе с разрешением 3,0 кэВ на линии 1,33 МэВ (^{60}Co).

Альфа-измерения проводили на Si(Au)-детекторе площадью 0,6 см², разрешением 16 кэВ и эффективностью регистрации 8,1 %. Источники для альфа-спектрометрии были изготовлены путем электрохимического осаждения на подложки из нержавеющей стали из раствора сульфата аммония. Потери Pu в процессе электрохимического осаждения составляли ~ 4–5%. [19]. Детектирование ^{236}Pu производили по линиям с $E_\alpha=5,77$ МэВ (72,4%) и $E_\alpha=5,72$ МэВ (27,6%), ^{237}Np по линиям с $E_\alpha=4,79$ МэВ (42%) и $E_\alpha=4,77$ МэВ (28%).

Результаты и обсуждение

Значения активности, изотопной чистоты и сечений образования ^{236}Pu , рассчитанные по результатам 20 ч измерений мишеней ^{236}Pu (≈ 400 Бк в первом опыте и $\approx 1,2$ кБк – во втором) представлены в таблице. Все значения указаны на момент измерения (15 – 40 суток по окончании облучения).

Выход ^{236}Pu при облучении 1 мг ^{237}Np составил 4,4 Бк/мкА·ч, 10 мг – 50 Бк/мкА·ч. Корректная оценка значений сечения реакций нуклидов с γ -квантами является достаточно сложной задачей, включающей изучение зависимости выхода от максимальной энергии

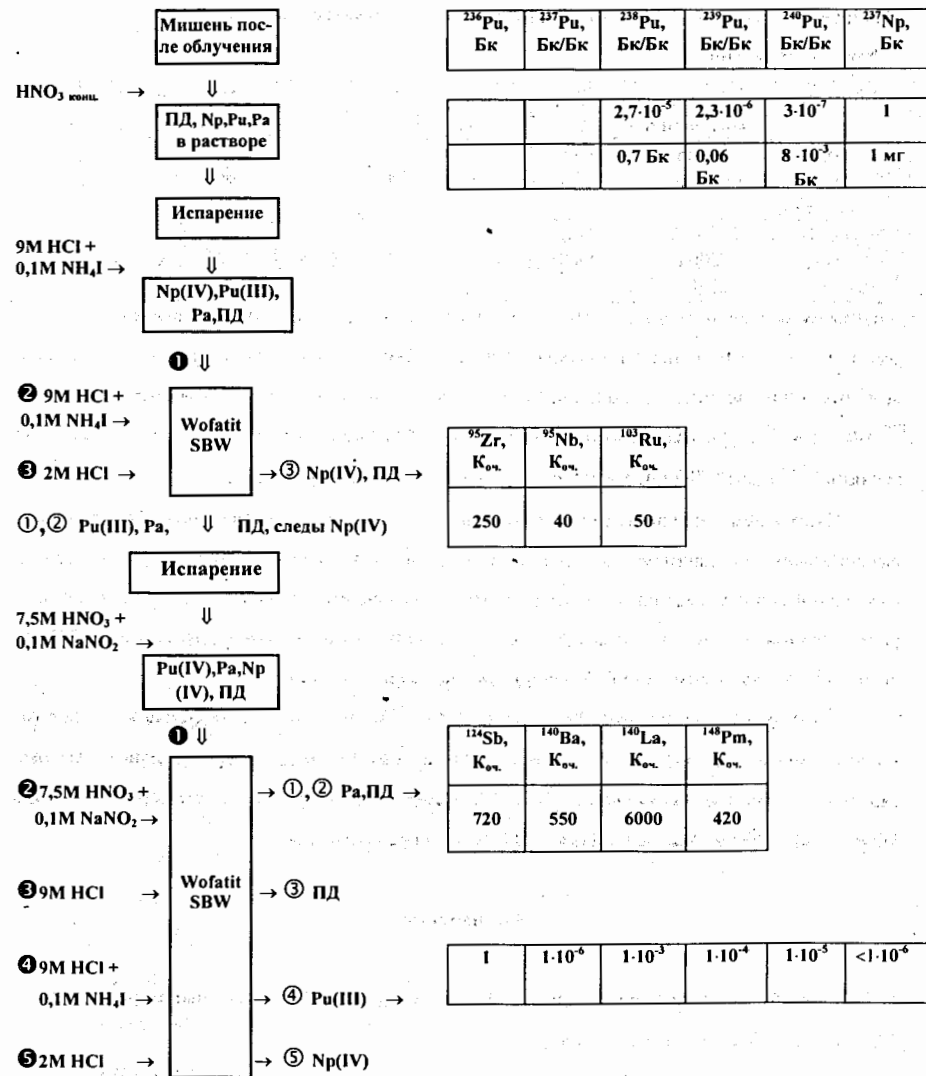


Рис. 2. Схема радиохимического выделения ^{236}Pu

Таблица. Активность, изотопная чистота и сечение образования ^{236}Pu в

$^{237}\text{Np}(\gamma, n)$ - реакции

Мишень	Условия облучения	^{236}Pu , кБк	^{238}Pu , Бк/Бк	^{239}Pu , Бк/Бк	^{240}Pu , Бк/Бк	^{237}Np , Бк/Бк	$\sigma^{236}\text{Pu}$, мб
^{237}Np -1мг ^{238}Pu -0,7 Бк ^{239}Pu -0,06 Бк	25 МэВ; 160 мкА·ч	0,57 ($\approx 0,70$)*	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$< 10^{-6}$	80
^{237}Np -10 мг ^{238}Pu -7 Бк ^{239}Pu -0,6 Бк	25 МэВ; 2000 мкА·ч	78,0 (≈ 100)*	$\leq 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-6}$	$< 10^{-4}$	96

* - приведены значения активности с учетом эффективности выделения из мишени.

фотонов с учетом энергетического распределения тормозного излучения. Согласно приближенной оценке, сделанной нами с учетом данных по мониторным реакциям $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$ и $^{107}\text{Ag}(\gamma, n)$, сечение образования ^{236}Pu составляет ≈ 90 мб, т.е. ≈ 180 мб для реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$ ^{236}Pu , что хорошо согласуется с данными [20, 21].

Отношения активностей плутониевых изотопов, представленные в таблице, рассчитывали по данным альфа-спектрометрического анализа коллекторных фольг, полученных после масс-спектрометрического разделения препарата ^{236}Pu . При этом в расчет принимали то, что эффективность сепарации, определенная для изотопа ^{236}Pu и равная 8%, будет той же самой и для других изотопов плутония.

Из результатов опытов видно, что чистота ^{236}Pu , получаемого по реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$, зависит только от чистоты исходного ^{237}Np и, кроме того, от интегрального потока фотонов. Отношение активностей $^{239}\text{Pu}/^{236}\text{Pu}$ в образцах, полученных нами при облучении 10 мг ^{237}Np (100 час, ток электронов - 20 мкА), определено равным 10^{-5} .

Заключение

Разработан метод получения ^{236}Pu в реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$ с выходом около 5 Бк/мкА·ч на 1 мг исходного ^{237}Np .

Получен препарат ^{236}Pu с изотопной чистотой (Бк/Бк) $^{236}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$, равной $1/\leq 1 \cdot 10^{-4}/1 \cdot 10^{-5}/2 \cdot 10^{-6}/< 1 \cdot 10^{-4}$.

Затраты на производство препаратов в реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$ (микротрон МТ-25) более чем в 10 раз ниже в сравнении с известными способами получения в реакциях $^{235}\text{U}(^4\text{He}, 3n)$

(с последующей масс-сепарацией) и $^{235}\text{U}(d, n)$. Вышеизложенное позволяет заключить, что реакция $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$ является наиболее оптимальной для получения препаратов ^{236}Pu с изотопной чистотой $10^{-6}-10^{-7}$.

Полученные нами препараты ^{236}Pu использовались в ЛЯР ОИЯИ при анализе природных образцов на содержание ^{238}Pu и $^{239,240}\text{Pu}$.

Авторы признательны Ю.В. Юшкевичу и А.Ф. Новгородову за проведение масс-сепарации образцов ^{236}Pu .

Литература

1. Трансурановые элементы в окружающей среде. Пер. с англ. под ред. У.С. Хэнсона. М.: Энергоатомиздат, 1985, с.344.
2. Buesseler K.O. et al. - J. Radioanal. Nucl. Chem., Art., 1990, v. 138, No1, pp. 33-48.
3. Абагян А.А. и др. - АЭ, 1986, т.6, в. 5, с. 301-320.
4. Shuttelhoff H. - Transuranium Nuclides in the Environment. Sym. Proc. in San-Francisco Nov. 17-21, 1975, IAEA, 1976, Vienna, pp. 461-477.
5. Nakanishi T. et al. - Nucl. Instrum. Methods, 1984, v. 223, p.239.
6. Harvey B.R., Lovett M.B. - Nucl. Instr. Meth. in Phys. Research, 1984, 223, pp. 224-234.
7. Sakanoue M. - Radiochimica Acta, 1987, v. A2, pp.103-112.
8. Bellido L.F., Robinson V.J. - Radiochimica Acta, 1994, v. 64, pp.11-14.
9. Win J., Ramler W. J. et al. - Physical Review, 1959, v.114, No 1, pp.163-173.
10. Dmitriev S.N. et al. - Appl. Radiat. Isot., 1995, v. 46, pp.307-309.
11. Luis F., Bellido L.F., Robinson V.J. - Radiochimica Acta, 1993, 62, pp.123-1244.
12. Аалтонен И. и др. - Радиохимия, 1996, т. 38, вып. 4, с. 303-307.
13. Aaltonen J. et al. - Appl. Radiat. Isot., 1993, v. 44, pp. 831-834.
14. Ishimori T., Akatsu E. - J. Nucl. Science and Technology, 1969, v. 6, No 8, pp. 480-482.
15. Veysiere A.H. et al. - Nucl. Phys., 1973, A199, 45, p. 45.
16. Dmitriev S.N. et al. - Abstract of Papers Sixth Int. Conf. Low Level Measurement of Actinides and Long-Lived Radionuclides in Biological and Environmental Samples, Cherbourg, France, 1996, p. 52.

17. Maslov O.D. et al. – *Analyt. Science & Technol.*, 1995, v. 8, p. 815.
18. Kalinnikov V.G. et al. – *Nucl. Instrum. Methods*, 1992, B70, 62, pp. 62–68.
19. Tahity N.A. – *Anal. Chem.*, 1972, v. 44, No 2, pp. 280–283.
20. Горбачев В.М., Замятнин Ю.С., Лбов А.А. – *Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер. Справочник*, М.: Атомиздат, 1976, с. 101, 60.
21. *Вопросы атомной науки и техники, Серия: ядерные константы*, 1992, в. 3–4, с. 3–67.

**Рукопись поступила в издательский отдел
26 ноября 1997 года.**