

# РАДІОХІМІЧНЕ ДОСЛІДЖЕННЯ УЛАМКІВ ПОДІЛУ ЯДЕР ВАЖКИХ ЕЛЕМЕНТІВ В СИСТЕМІ ВОДНИЙ РОЗЧИН - СЕЛЕКТИВНИЙ СОРБЕНТ.

Г.В.Васільєва, А.П.Осипенко, В.В. Стрелко, О.М.Фрадкін

Ужгородський державний університет, 88000 Ужгород, вул. Підгірна,46

Інститут сорбції та проблем ендоекології НАН України, 252680

Київ-164, вул.Генерала Наумова,13

Експериментально досліджено процес взаємодії уламків поділу ядер урану під дією нейтронів з фосфатом титана в статичних умовах. Виявлена помітна сорбція уламків ніобію і молібдену. Показана можливість модифікації гамма-спектрів шляхом сорбції частини уламків селективним сорбентом.

В останній час значна увага приділяється дослідженню характеристик реакції поділу важких ядер за методом гамма-спектрометрії випромінювання уламків ядер[1-2]. При цьому доводиться розшифровувати складні гамма-спектри, що зумовлено великою кількістю нуклідів- $\gamma$ -випромінювачів, накопичених на колекторах. Одержана таким чином інформація часто не є однозначною. Вимірювані  $\gamma$ -спектри можна значно спростити методом попереднього радіохімічного виділення певних уламків чи груп уламків[3]. Але таке виділення потребує значного часу і ефективно лише для довгоживучих уламків. У зв'язку з цим набуває актуального значення пошук експресних методик виділення досліджуваних нуклідів з загальної кількості. При високій статистичній точності вимірювання може бути корисним навіть неповне розділення уламків. Модифікація  $\gamma$ -спектрів, яка має місце у цьому випадку, при відповідному опрацюванні забезпечить додаткові дані про співвідношення нуклідів у зразку.

З іншого боку сучасність ставить перед людьми ряд екологічних проблем, пов'язаних з очисткою питної води, повітря, стічних вод від забруднень, зокрема, від радіонуклідів. Для цієї мети широко використовуються різноманітні адсорбенти [4,5]. Таким чином пошук і

дослідження хімічних методів впливу на спектри  $\gamma$ -випромінювання колекторів можуть мати також практичне значення. У даній роботі описана методика та результати попередніх досліджень характеру адсорбції ряду уламків поділу ядер урану з водного розчину при використанні у якості сорбента фосфату титана[6].

Чотири мішені окису урану з 90%-м збагаченням ізотопом  $U^{235}$  товщиною  $1,75\text{мг.см}^2$  кожна, були закріплені у ванночках з водою на віддалі 3 мм від її поверхні. Ванночки розміщувались впритул до берилієвої мішені, установленої на віддалі 15 см від гальмівної мішені мікротрона і оточеної сповільнювачем із поліетиленових блоків. Нейтрони з реакції  ${}^9\text{Be}(\gamma, n)$ , викликані гальмівним випромінюванням мікротрона, сповільнювались у берилії та у блоках і, потрапляючи на уранові мішені, спричиняли реакцію поділу.

Частина уламків поділу при цьому акумулювались водою у ванночках. Час опромінення становив 2 год при струмі мікротрона  $\sim 1\text{мкА}$ . Після опромінення вода з усіх ванночок змішувалась і розливалась у 4 посудини по 30 мл у кожному. В 3 із 4-х посудин був внесений адсорбент у кількості 0,96 - 1,06 г. Час сорбції у статичних умовах при кімнатній температурі становив 2, 6 та 8 год.

В іншій експозиції час сорбції був рівним 16 год. Після сорбції вода зливалась в іншу посудину і проводилось вимірювання спектрів гамма-випромінювання з води та сорбента за допомогою напівпровідникового Ge-Li-детектора ДГДК50Б[1]. Інтервали часу між кінцем опромінення і початком вимірювання  $\gamma$ -спектру,  $T_{ох}$  (часи 'охождення'), вибирались у діапазоні 1,5 - 25 год. Час вимірювання одного спектру,  $T_{в}$ , - від 20 хв до 2 год. При цьому виміряна інтенсивність експериментального максимуму ("площа під піком"),  $S$ , пов'язується з числом ядер даного нукліда,  $N$ , в зразку безпосередньо

після опромінення зразка очевидним співвідношенням:

$$N = \frac{(S/\epsilon)}{\exp\left(-\frac{t_1}{T_{1/2}}\right) - \exp\left(-\frac{t_2}{T_{1/2}}\right)},$$

де  $\epsilon$  - загальна ефективність реєстрації гамма-кванта даного нукліда,  $t_1 = T_{ох}$ ,  $t_2 = T_{ох} + T_{в}$ .

При згаданих часах охолодження слід очікувати помітний вклад у виміряні спектри уламків з періодами напіврозпаду від 1-ї до кількох десятків годин та з виходами в реакції поділу більшими за 0,01 уламок/поділ (табл.1)

Таблиця 1. Уламки поділу урану з високими виходами і періодом напіврозпаду в діапазоні 30 - 4700 хв

Уламок A-X-Z	Період Напіврозпаду, $T_{1/2}$ , (хв)	Вихід на 1 акт поділу, %	Енергія $\gamma$ -лінії, кеВ	Квантовий вихід лінії, %
84-Br-35	31,8	0,93	881,6	44
87-Kr-36	76,4	2,54	402,6	49,4
88-Kr-36	171,6	3,53	196,3	26,3
97-Zr-40	1014	5,9	743,4	98,2
97-Nb-41	(1021*)72,1	6,0	657,9	100
99-Mo-42	3961	6,1	140,5 739,5	90,1 12,5
105-Ru-44	264	0,9	724,2	47,3
132-Te-52	4680	4,37	228,2	88
134-Te-52	41,8	1,0	297 1279	96,9 99,9
133-I-53	1248	5,3	529,9	87,3
134-I-53	52,6	1,1	847	95,4
135-I-53	396,6	6,1	1266,5 1131,0	30,3 22,9
135-Xe-54	(396,6*)546	6,4	250	90
143-Ce-58	1980	6,0	293	42

\*) Період напіврозпаду попередника.

На рис.1 показано приклад спектрів, одержаних для енергій  $\gamma$ -квантів в околі лінії 658 кеВ. У цій частині спектрів очікувалось проявлення лінії  $^{97}\text{Nb}$  (табл.1). Час розпаду нуклідів перед вимірюванням спектрів складав близько

20 годин. Як видно з рисунка при вказаній енергії помітний максимум.

Причому він проявляється як у спектрі від водяного колектора уламків, який не був у контакті з сорбентом, так і в спектрах від аналогічного колектора, який

взаємодіяв з сорбентом протягом 8 годин, та від сорбента після зливання води (від "залишку"). Сума імпульсів у максимумах спектрів від води, що була у контакті з адсорбентом, та від самого адсорбента

після внесення поправок на час розпаду у межах похибок експерименту дорівнювала відповідній сумі для спектру з води, в яку сорбент не вносився.

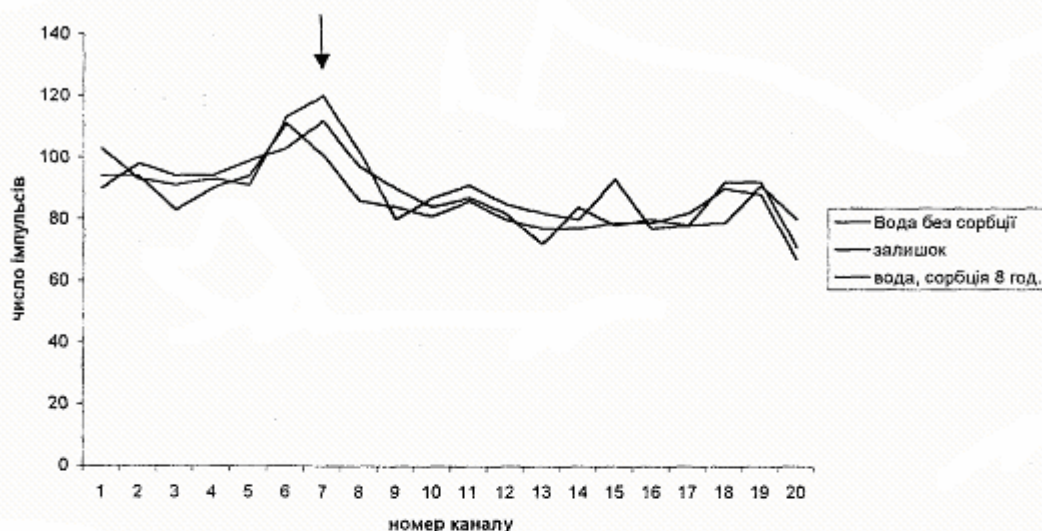


Рис.1. Ділянка  $\gamma$ -спектрів в околі лінії  $^{97}\text{Nb}$ . (Максимуми при  $E = 651\text{keV}$ . Поправка на різницю часів розпаду не внесена).

Ефективність сорбції визначалась як відношення інтенсивності відповідної лінії,  $N_c$ , одержаної від сорбента, до суми інтенсивностей тієї ж лінії, одержаної від води  $N_B$  і від залишку,  $N_C$ :

$$C = N_c / (N_B + N_C)$$

При цьому інтенсивності розраховувались для однакових часів

Таблиця 2. Залежність коефіцієнта  $C = N_c / (N_B + N_C)$  від часу сорбції.

Уламок:	97-Nb-41	99-Mo-42	133-I-53
Час сорбції, год.			
2	0,35	-	0,24
6	0,53	-	0,24
8	0,50	0,36	0,30
16	0,55	0,62	0,32

Статистична точність значень  $C$  у табл.2 складає 15-20%.

Наведені в таблиці дані свідчать про наявність ефекту сорбції ніобію і молібдену титан-фосфатом в описаних умовах. Трохи несподіваним є значна

охладження (як правило, зводились до  $T_{ок} = 0$ ). Вклад активності залишкової води у спектри від сорбента, як показали додаткові виміри, не перевищував 3%.

Результати вимірювання ефективності сорбції для ряду уламків наведено в таблиці 2.

величина активності йоду в залишку, який не мав би захоплюватись даним сорбентом. Часткове видалення йоду з

води, можливо, вказує на проявлення більш складного механізму взаємодії [7].

Слід відмітити, що згадані в табл.1 нукліди були присутні у воді у мікродозах, що підвищує чутливість процесів до умов проведення експерименту. Відмітимо також, що в процесі накопичення уламків поділу у воді, остання піддавалась дії досить інтенсивних імпульсних доз гамма- і електронної радіації, що сприяло утворенню хімічно активних компонент.

Якщо навіть припустити, що зменшення концентрації йоду зобов'язане

впливу неконтрольованих умов експерименту і що у випадку ніобію та молибдену цей ефект був аналогічним, все ж можна стверджувати, що фосфат титану сорбує іони цих металів досить суттєво. Важливо, що ефект помітний навіть при невеликих часах сорбції. Це дає змогу сподіватись на можливість здійснення достатньо експресної модифікації гамма-спектрів шляхом процесу сорбції при спеціально вибраних умовах.

1. В.С. Бохінюк, А.П.Осипенко, В.А. Пилипченко, Ю.В. Пилипченко, І.В.Хіміч.//Науковий вісник УжДУ. Серія фізика. 1998. Випуск 3,- с.30.
2. V.S. Bochinyuk, A.P. Osipenko, O.A., V.A. Pilipchenko, A.V. Fradkin. The Centenary of Electron(EL-100). Proceeding of Int.Conf. Uzhgorod,1997. Видав-во "Карпати", Ужгород,(1997). с.140.
3. И.А. Белицкий, Л.Е. Панин. Минералого-физико-химические свойства и биологическая активность цеолитосодержащих горных пород.// Физико-химические и медико-биологические свойства природных цеолитов. Сб.научн.трудов. - 1990.-145 с. С.5-7.
4. Rao M.G.,Polzer W.I.,Fuentes H.R.,Essington E. Modelling the Mass Transfer Rate of radioactive Cobalt from a Synthetic Ground Water to Volcanic Tuff Media.// J. of Contaminant Hydrology. v.6,- 1990-p. 69.
5. Lee J.-O.,HanK.-W.,Buckley L.P. Short-term leaching behavior of Co-60,Sr-85 nd Cs-137 from cemented ionexchange resin waste forms.// Stabilization and solidification of Hazardous, Radioactive and Mixed Wastes. v.2,-1990-p. 204.
6. Н.В. Драницына, Ю.В. Егоров, В.Е. Фоминых. Аппликационный синтез ионитов на основе фосфата титана.// Неорганические материалы. - 1970., т.6,№12,-с.2178.
7. А.П.Квашненко,А.И.Бортун, В.Н.Хрящевский. //Укр.хим.журн. - 1991. - т.57,№10. - с.1070 - 1073.

## **RADIOCHEMICAL INVESTIGATION OF HEAVY ELEMENTS NUCLEUS FISSION FRAGMENTS IN WATER SOLUTION – SELECTIVE SORBENT SYSTEM**

**H.V. Vasilieva, A.P.Osipenko,V.V. Strelko, A.M. Fradkin**

Uzhgorod State University, 88000, Uzhgorod, Kapitulna,9

ISPE, 252680 Kyiv164,Generala Naumova st.,13.

Process of interaction some uran nucleus fission fragments and titan phosphate in water solution was experimental investigated. Appreciable sorbtion of Nb and Mo fragmentsis observed. The posibility of  $\gamma$ -spectra modification by selective sorbent absorbtion of part of fragments is shown.