

P12-2004-193

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

ПОЛУЧЕНИЕ ^{237}U В ФОТОЯДЕРНОЙ РЕАКЦИИ
 $^{238}\text{U} (\gamma, n)$ НА УСКОРИТЕЛЕ ЭЛЕКТРОНОВ —
МИКРОТРОНЕ МТ-25

Направлено в журнал «Радиохимия»

Сабельников А. В. и др.

P12-2004-193

Получение ^{237}U в фотоядерной реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)$
на ускорителе электронов — микротроне МТ-25

^{237}U был получен в реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ на ускорителе электронов — микротроне МТ-25 ЛЯР ОИЯИ. Радиационный выход ^{237}U в условиях облучения составил 1 кБк/мкА·ч·мг ^{238}U . Для отделения ^{237}U от материала мишени был использован метод сбора ядер отдачи в системе твердое–твердое. В качестве акцептора ^{237}U использовали фториды элементов I–III групп таблицы Менделеева. Очистку ^{237}U от продуктов деления проводили с применением экстракции и ионного обмена. Получен препарат ^{237}U с удельной активностью 49500 кБк/мг ^{238}U . Содержание радиоактивных примесей в препарате не превысило 10^{-6} Бк/Бк. Химический выход ^{237}U составил 70%.

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2004

Перевод авторов

Sabelnikov A. V. et al.

P12-2004-193

Production of ^{237}U in the $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ photonuclear reaction
at the electron accelerator MT-25 microtron

^{237}U was obtained in the $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ reaction at the electron accelerator MT-25 microtron of the FLNR of the JINR. The ^{237}U radiation yield under experimental conditions amounted to 1 kBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{h}\cdot\text{mg}$ ^{238}U . Capture of recoil atoms in a solid–solid system was used for isolation of ^{237}U from the target material. Fluorides of chemical elements from I–III series of the Periodic Table of the Elements were used as ^{237}U acceptors. The ^{237}U isolation from radioactive impurities was realized by means of extraction and ion exchange. Specific activity of the ^{237}U preparation was equal to 49500 kBq/mg ^{238}U . The radioactive impurity content did not exceed 10^{-6} Bq/Bq. The ^{237}U chemical yield amounted to 70%.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2004

Благодаря своим ядерно-физическим характеристикам ^{237}U ($T_{1/2} = 6,75$ сут, β^- , $E_\gamma = 0,06$ МэВ (36%), 0,208 МэВ (23%)) [1] представляет значительный интерес для использования в качестве трассера при исследовании поведения урана в различных химических и биологических системах, изучения его состояния в ультранизких концентрациях методом горизонтального зонного электрофореза в свободном электролите. ^{237}U используется в мессбауэровской спектроскопии в качестве источника резонансного γ -излучения. Однако из-за отсутствия подходящих ядерных реакций для его производства этот изотоп не нашел широкого практического применения.

Один из путей получения ^{237}U — использование генератора на основе ^{241}Pu [2–4], который является довольно редким изотопом. В работе [4] за один цикл выделения получают ~ 220 МБк (~ 6 мКи) ^{237}U при работе с большой удельной активностью плутония (~ 700 Ки/л), что приводит к повышенному тепловыделению и радиолитическому разложению раствора.

Уран-237 получают также при облучении ^{238}U быстрыми нейтронами или ^{235}U и ^{236}U медленными нейтронами [2, 5, 6]. Этот изотоп может быть получен и на циклотроне в ядерных реакциях: $^{238}\text{U}(d, t)^{237}\text{U}$, $^{238}\text{U}(\alpha, \alpha n)^{237}\text{U}$, $^{238}\text{U}(p, pn)^{237}\text{U}$ [7].

Реакция $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ была использована в работе для аналитического определения урана в геологических образцах [8, 9], а в работе [10] — для получения ^{237}U , который применяли в качестве трассера при аналитическом определении урана в почвах и природных водах. ^{237}U , полученный в $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ реакции при облучении UO_3 на микротроне, был использован для изучения кинетики гетерогенного изотопного обмена в системе: водный раствор $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ — ионообменная смола Wofatit CA-20 в UO_2^{2+} -форме [11].

Активность осколков деления, образующихся при облучении нейтронами или гамма-квантами ^{238}U , на несколько порядков больше активности ^{237}U . В результате очистки от осколков деления получают ^{237}U в смеси с другими изотопами урана и с небольшой удельной активностью. В связи с этим является актуальной разработка метода получения ^{237}U с высокой удельной активностью.

Целью данной работы является получение ^{237}U в фотоядерной реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ и повышение удельной активности препарата.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Реакция $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ происходит без изменения заряда ядра, поэтому концентрирование в процессе облучения, т.е. увеличение удельной актив-

сти радиоизотопа ^{237}U , необходимо проводить с использованием метода сбора ядер отдачи. Успешное применение этого метода возможно в том случае, когда облучаемый элемент обладает способностью существовать, по крайней мере, в двух достаточно устойчивых валентных состояниях и химические соединения, в которых стабилизируется радиоактивный изотоп, могут быть сравнительно легко отделены от исходного соединения мишени. Кроме того, используя большие пробеги ядер отдачи, возникающие при реакции (γ, n) , можно проводить обогащение радиоактивных изотопов с помощью мелкодисперсных систем, например систем жидкость–твердое и твердое–твердое. При этом одна фаза действует как донор, а другая — как акцептор радиоактивного элемента.

Возможность применения системы жидкое–твердое для концентрирования продуктов реакции в процессе облучения гамма-квантами была показана на примере сбора ядер ^{54}Mn , получаемого в результате реакции $^{55}\text{Mn}(\gamma, n)^{54}\text{Mn}$ при облучении концентрированного раствора KMnO_4 . При этом ^{54}Mn стабилизируется в четырехвалентной форме, образуя трудно растворимое соединение MnO_2 [12].

Ядра отдачи ^{237}U концентрировали на двуокиси марганца при облучении раствора $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ в присутствии MnO_2 или KMnO_4 [13]. В этом случае ядра отдачи вбиваются в добавленную или образующуюся двуокись марганца. Растворы помещали в стеклянные пробирки и проводили облучение гамма-квантами с $E_\gamma = 24$ МэВ и средним током электронов, равным 15 мкА, в течение 1 ч.

Таблица 1. Результаты облучения образцов урана

№ п/п	Образец ^{238}U	Количество ^{238}U , мг	Выход ^{237}U , Бк/мкА·ч·мг ^{238}U
1	U-фольга	3,8	1100
2	UO ₂ -порошок	11	1000

Для определения выхода ^{237}U в реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ облучали мишени, состоящие из урановой фольги массой 3,8 мг и порошка диоксида урана (UO_2), содержащего 11 мг урана (табл. 1). Мишени помещали в цилиндрический алюминиевый держатель, описанный в работе [14]. Облучение проводили в течение 5 ч гамма-квантами с $E_\gamma = 24$ МэВ на микротроне МТ-25. Ток электронов был равен 15 мкА. Облученную мишень после 24-часового “охлаждения” измеряли на гамма-спектрометре. Такие же условия облучения были при проведении экспериментов по сбору ядер отдачи ^{237}U в приведенных ниже системах твердое–твердое с содержанием урана в каждой мишени ~ 10 мг (табл. 2):

1. Смесь порошков карбида урана и хлорида натрия. Смесь обрабатывали раствором $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$.

2. Смесь порошков карбида урана и лимонно-кислого натрия. Смесь обрабатывали раствором $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$.

3. В серии опытов использовали смеси порошков UO_2Cl_2 или $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ с фторидами элементов I–III групп. Макрокомпонент UO_2Cl_2 ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$) отмывали раствором 0,1 М HCl, 0,1 М HNO_3 и растворами 0,1 М HCl в присутствии фторидов I–II групп.

Таблица 2. Результаты экспериментов по сбору ядер отдачи ^{54}Mn и ^{237}U

№ п/п	Мишень	Условия разделения	Удельная активность ^{237}U , кБк/мг ^{238}U (мишень/препарат)
1	Раствор KMnO_4	Фильтрация	^{54}Mn — 6 /30
2	Раствор $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 + \text{MnO}_2$	[U] = 1мг/мл, V=2 мл	30/300
3	Раствор $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 + \text{KMnO}_4$	[U] = 1мг/мл, V=2мл	30/300
4	UC + NaCl	Раствор $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$	75/630
5	UC + Na лимоннокислый.	Раствор $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$	75/750
6	$\text{UO}_2\text{Cl}_2 + \text{LaF}_3 + \text{CaF}_2$	0,1 М HCl, центрифугирование	75/2000
7	$\text{UO}_2\text{Cl}_2 + \text{LaF}_3 + \text{CaF}_2$	0,1 М HCl + CaF_2 , центрифугирование	75/4900
8	$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 + \text{LaF}_3 + \text{CaF}_2 + \text{NaF}$	0,1 М HNO_3 , фильтрация	75/49500

Разделение осадков и растворов проводили фильтрацией через ядерный фильтр с диаметром пор 0,1 мкм или центрифугированием.

В веществе-сборнике концентрировали ^{237}U (сечение реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n) \cong 300$ мб) и продукты деления урана (сечение реакции $^{238}\text{U}(\gamma, f) \cong 165$ –168 мб). Для очистки от продуктов деления при фторидном выделении радиоизотопов применяли схему разделения, представленную на рис. 1. ^{238}U отмывали от вещества мишени раствором 0,1М HCl, затем осадок растворяли в 5М HNO_3 в присутствии борной кислоты при нагревании и стабилизировали уран в высшем валентном состоянии U(VI) при помощи KBrO_3 . Затем к полученному раствору добавляли NH_4NO_3 до концентрации 6 моль/л и проводили экстракцию ^{237}U 30%-м раствором ТБФ в керосине. Реэкстракцию осуществляли раствором 1 М CH_3COONa , который затем упари-

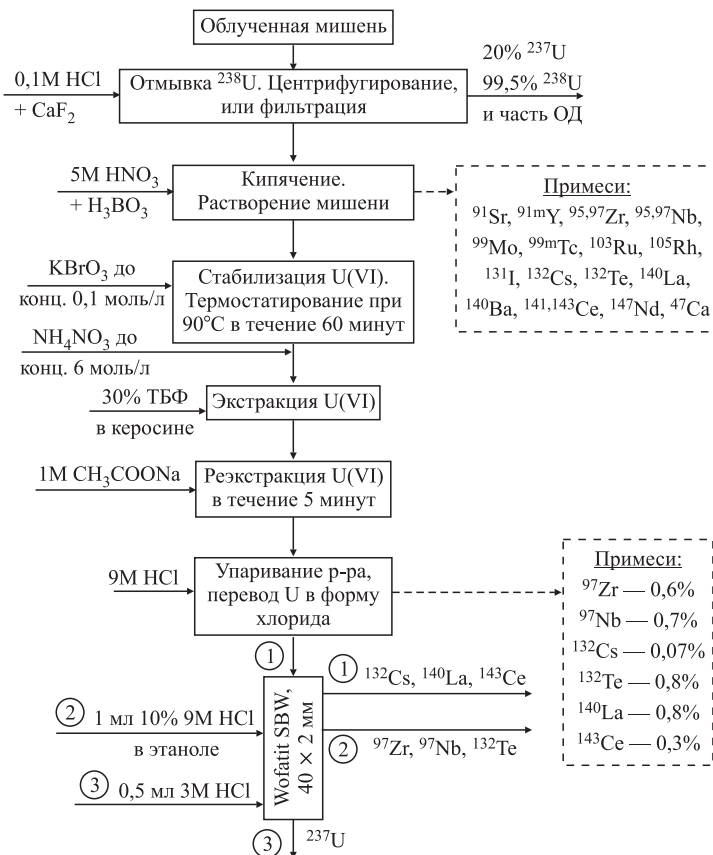


Рис. 1. Схема выделения и очистки ²³⁷U

вали до влажных солей и переводили осадок в форму хлорида добавлением 9M HCl с последующим упариванием раствора. Последнюю операцию повторяли три раза, предварительно добавляя 9M HCl. Затем осадок влажных солей растворяли в 9M HCl и раствор подавали на ионообменную колонку 40×2 мм с сильноосновным анионитом Wofatit SBW. Колонку промывали 1 мл 10%-го раствора 9M HCl в этаноле. После десорбции следов осколков деления уран-237 элюировали 0,5 мл раствора 3M HCl.

СПЕКТРОМЕТРИЯ ²³⁷U

Определение подлинности радионуклида проводили по энергиям гамма- и рентгеновского излучений, а также по периоду полураспада.

Радионуклидные примеси, образующиеся в результате конкурирующих реакций, реакции $^{238}\text{U}(\gamma, f)$, а также в результате активации примесных элементов, присутствующих в исходном материале мишени, определяли по гамма-спектрам и рентгеновским спектрам одновременно с основным радионуклидом. Радионуклидную чистоту препарата оценивали как отношение активности примеси к активности основного радионуклида, выраженное в Бк/Бк, а удельную активность — как отношение активности препарата к его массе, нормированной на 1 мг.

Гамма-спектрометрические измерения различных фракций и конечного препарата проводили с использованием детектора из сверхчистого Ge с разрешением 1,5 кэВ на линии 1,33 МэВ (^{60}Co). Детектирование ^{237}U производили по линиям с $E_\gamma = 0,06$ МэВ (36%); 0,114 МэВ (0,06%); 0,165 МэВ (2,0%); 0,208 МэВ (23%) [1]. Измерения рентгеновских спектров препаратов и определение в них содержания стабильных элементов проводили на Si(Li)-детекторе с разрешением ~ 200 эВ на линии $\text{FeK}_{\alpha 1}$ (6,4 кэВ) с возбуждением рентгеновского излучения радиоизотопным источником ^{109}Cd .

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты экспериментов представлены в табл. 1 и 2.

По результатам измерений был оценен выход ^{237}U , который соответствовал 1 кБк/мкА · ч · мг ^{238}U .

Из представленных результатов следует, что повышение удельной активности ^{237}U достигает двух-трех порядков при использовании для облучения смесей порошков UO_2Cl_2 ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$) с фторидами элементов I–III групп.

На рис. 1 дана схема очистки и выделения ^{237}U из облученной мишени (табл. 2, пп. 6–8), а в табл. 3 представлено распределение продуктов деления и урана по схеме.

Выход ^{237}U в результате переработки мишени ^{238}U по схеме, представленной на рис. 1, составил 70%. На рис. 2 и 3 даны спектры рентгеновского и гамма-излучений препарата ^{237}U . Как видно из табл. 3, рис. 2 и 3, содержание примесей радионуклидов в препарате ^{237}U не превысило величину 10^{-6} Бк/Бк. Удельная активность ^{237}U равнялась 49500 кБк/мг ^{238}U (табл. 2, п. 8).

Для представленных экспериментальных условий поток тепловых нейтронов 10^5 – 10^6 с $^{-1}$ · см $^{-2}$ оценен нами с использованием реакции $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$. При облучении природного урана фотонами до 25 МэВ и образовавшимися нейтронами [15, 16] не наблюдается реакций, приводящих к образованию такого количества изотопов урана, которое бы нарушало изотопную чистоту конечного продукта — ^{237}U , и определяющим является разделение ^{237}U и ^{238}U .

Таблица 3. Распределение продуктов деления при очистке и выделении урана-237 из облученной мишени

Нуклид	E_{γ} , кэВ	Активность раствора перед экстракцией, Бк	Активность реэкстракта перед колонкой, Бк	Активность урана после колонки, Бк
^{237}U	208	$3,3 \cdot 10^5$	$3,0 \cdot 10^5$	$2,9 \cdot 10^5$
^{91}Sr	1024	$1,6 \cdot 10^3$	$< 2,8 \cdot 10^{-2}$	$< 2,8 \cdot 10^{-2}$
^{91m}Y	556	$8,9 \cdot 10^2$	$< 2,3 \cdot 10^{-2}$	$< 2,3 \cdot 10^{-2}$
^{95}Zr	756	$2,1 \cdot 10^3$	$< 1,3 \cdot 10^{-2}$	$< 1,3 \cdot 10^{-2}$
^{95}Nb	765	$7,4 \cdot 10^1$	$< 9,3 \cdot 10^{-3}$	$< 9,3 \cdot 10^{-3}$
^{97}Zr	355	$1,2 \cdot 10^4$	$7,2 \cdot 10^1$	$< 9,9 \cdot 10^{-1}$
^{97}Nb	658	$1,3 \cdot 10^4$	$9,2 \cdot 10^1$	$< 2,8 \cdot 10^{-2}$
^{99}Mo	181	$2,3 \cdot 10^4$	$< 5,9 \cdot 10^{-1}$	$< 5,9 \cdot 10^{-1}$
^{99m}Tc	140	$2,2 \cdot 10^4$	$< 4,9 \cdot 10^{-2}$	$< 4,9 \cdot 10^{-2}$
^{103}Ru	497	$1,8 \cdot 10^3$	$< 1,2 \cdot 10^{-2}$	$< 1,2 \cdot 10^{-2}$
^{105}Rh	306	$7,7 \cdot 10^3$	$< 3,4 \cdot 10^{-1}$	$< 3,4 \cdot 10^{-1}$
^{131}I	285	$5,9 \cdot 10^3$	$< 2,3 \cdot 10^{-1}$	$< 2,3 \cdot 10^{-1}$
^{132}Cs	668	$1,5 \cdot 10^4$	$1,1 \cdot 10^1$	$< 7,2 \cdot 10^{-3}$
^{132}Te	228	$1,7 \cdot 10^4$	$1,3 \cdot 10^2$	$< 4,4 \cdot 10^{-2}$
^{140}La	1596	$7,0 \cdot 10^3$	$5,8 \cdot 10^1$	$< 1,5 \cdot 10^{-2}$
^{140}Ba	537	$8,2 \cdot 10^3$	$< 8,0 \cdot 10^{-2}$	$< 8,0 \cdot 10^{-2}$
^{141}Ce	145	$3,6 \cdot 10^3$	$< 6,9 \cdot 10^{-2}$	$< 6,9 \cdot 10^{-2}$
^{143}Ce	293	$2,0 \cdot 10^4$	$5,8 \cdot 10^1$	$< 3,3 \cdot 10^{-2}$
^{147}Nd	531	$2,6 \cdot 10^4$	$< 5,3 \cdot 10^{-2}$	$< 5,3 \cdot 10^{-2}$

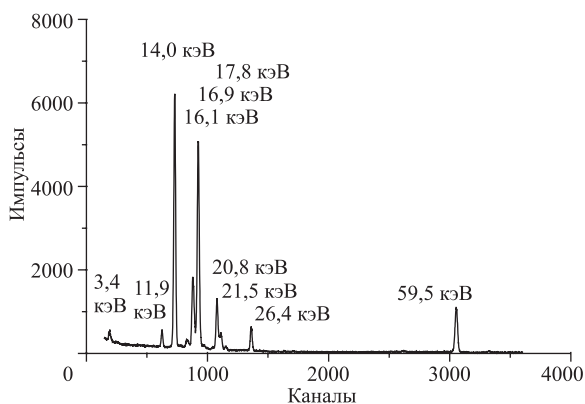


Рис. 2. Рентгеновский спектр ^{237}U

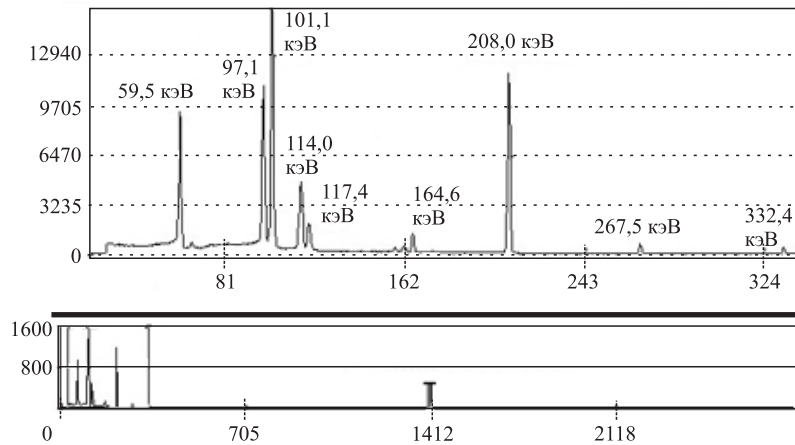


Рис. 3. Гамма-спектр ^{237}U

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработан метод получения ^{237}U в реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ с выходом около 1 кБк/мкА · ч на 1 мг исходного ^{238}U .

Получен препарат ^{237}U с удельной активностью 49500 кБк/мг ^{238}U и содержанием радиоактивных примесей $\leq 10^{-6}$ Бк/Бк.

ЛИТЕРАТУРА

1. Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения: Рекомендации МКРЗ: В 2 ч. В 4 кн. / Под ред. А.А. Моисеева. Публикация 38-я. Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1987. ч.2. кн. 2. С. 320.
2. Stone J. // Proc. IAEA Symp. "Application of the Mossbauer Effect in Chemistry and Solid State Physics". 1966. Rep. 50.
3. Химия актиноидов. / Ред. Дж. Кац, Г. Сиборг и Л. Морсс. М.: Мир, 1991. Т.1. С. 188.
4. Александров Б.М. и др. // АЭ. 1978. Т. 45(1). С. 66.
5. Головня В.Я. и др. // Нейтронная физика. 1988. Т. 3. С. 281.
6. Кривохатский А.С., Романов Ю.Ф. // Изв. Вузов. Физика. Изд. Томского ун-та. 1969. Т. 1. С. 28.

7. Хайд Э., Перлман И., Сиборг Г. Ядерные свойства тяжелых элементов. Вып. 4. Изотопы тория, протактиния и урана. Естественная и искусственная радиоактивность. / Пер. с англ. под ред. Г.Н. Флерова. М.: Атомиздат, 1969. С. 100.
8. Berthelot Ch., Eschbach H.L., Vergingh V., Verheyen F. // Proceedings of Modern Trends in Activation Analysis. V. I. Copenhagen, 1986. P. 663–670.
9. Гэрбуш Ш. и др. // ХТТ. 1992. № 3. С. 127.
10. Maslov O.D., Dmitriev S.N., Molokanova L.G., Gustova M.V., Sabelnikov A.V. Trace Element Analysis of Aktinides in Natural Waters and Soils Using (γ, f) Reaction // Radionuclides and Heavy Metals in Environment / Ed. Frontasyeva M.V. et. al. Kluwer Academic Publishers, 2001. P. 135–141.
11. Gosman A. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles. 1988. V. 121(2). P. 375.
12. Бреслер С.Е. // Радиоактивные элементы. М.: ГИТТЛ, 1957. С. 389.
13. Sabelnikov A.V., Dmitriev S.N., Maslov O.D. // NRC5. Extended Abstracts. 5th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, Sept. 3–8. Pontresina, Switzerland, 2000. P.692.
14. Дмитриев С.Н. и др. // Радиохимия. 1998. Т. 40, № 6. С. 533.
15. Центр данных фотоядерных экспериментов: <http://cdfc.sinp.msu.ru/>
16. Горбачев В.М., Замятнин Ю.С., Лбов А.А. // Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер. Справочник. М.: Атомиздат, 1976. С. 97.

Получено 9 декабря 2004 г.

Редактор *М. И. Зарубина*

Подписано в печать 17.02.2005.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,5. Уч.-изд. л. 0,61. Тираж 200 экз. Заказ № 54792.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru

www.jinr.ru/publish/