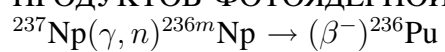


P6-2016-29

М. В. Густова, О. Д. Маслов, А. В. Сабельников

**ПРИМЕНЕНИЕ СМОЛЫ TEVA ДЛЯ РАЗДЕЛЕНИЯ
ПРОДУКТОВ ФОТОЯДЕРНОЙ РЕАКЦИИ**



Направлено в журнал «Радиохимия»

Густова М. В., Маслов О. Д., Сабельников А. В.

P6-2016-29

Применение смолы TEVA для разделения продуктов фотоядерной реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)^{236m}\text{Np} \rightarrow (\beta^-)^{236}\text{Pu}$

Изучена возможность применения смолы TEVA (фирмы TRISKEM), выполненной на основе экстрагента Aliquat-336 (соли четвертичного аммониевого основания) для выделения и концентрирования ^{236}Pu . Изотоп ^{236}Pu получали в результате фотоядерной реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)^{236m}\text{Np} \rightarrow (\beta^-)^{236}\text{Pu}$ на микротроне МТ-25 в ЛЯР ОИЯИ. Смолу TEVA применяли для отделения ^{236}Pu от мишени ^{237}Np , продуктов фотоядерных реакций (γ, n) , дочерних продуктов ^{237}Np и ^{236}Pu , а также осколков вынужденного деления в результате реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$ (^{237}Np , ^{232}U , ^{228}Th , ^{233}Pa , ^{137}Cs и др.). Содержание примесей актиноидных элементов в основном продукте было меньше чем 10^{-6} Бк/Бк.

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2016

Gustova M. V., Maslov O. D., Sabelnikov A. V.

P6-2016-29

Application of TEVA Resin for the Separation of the Products of Photonuclear Reaction $^{237}\text{Np}(\gamma, n)^{236m}\text{Np} \rightarrow (\beta^-)^{236}\text{Pu}$

The paper reports on the possibility of using TEVA resin (TRISKEM company), made on the basis of the Aliquat-336 extractant (a quaternary ammonium salt), for the isolation and concentration of ^{236}Pu . The ^{236}Pu isotope was produced as a result of the photonuclear reaction $^{237}\text{Np}(\gamma, n)^{236m}\text{Np} \rightarrow (\beta^-)^{236}\text{Pu}$ using the MT-25 microtron at FLNR, JINR. Plutonium-236 was separated on the TEVA resin from ^{237}Np target. Products of (γ, n) photonuclear reactions, daughter products of ^{236}Pu and ^{237}Np , fragments of $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$ (^{237}Np , ^{232}U , ^{228}Th , ^{233}Pa , ^{137}Cs , etc.) induced fission were also separated. The content of the actinide elements in ^{236}Pu was less than 10^{-6} Bq/Bq.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2016

Радиоизотоп ^{236}Pu ($T_{1/2} = 2,858$ лет, $E_{\alpha} = 5,77$ МэВ {72,4%} и $E_{\alpha} = 5,72$ МэВ {27,6%}) [1] является основным трассером, применяемым в современной радиоэкологии для разработки ультрачувствительных методов анализа плутония в биологических объектах (продуктах питания и жизнедеятельности человека) и природных образцах (почве, воде и т.д.) [2, 3]. Определение изотопных отношений $^{239,240}\text{Pu}$ к ^{238}Pu позволяет идентифицировать источник загрязнения (ядерные взрывы, аварии на АЭС и др.) исследуемых объектов [4]. Поэтому разработка новых методов разделения изотопов для получения ^{236}Pu высокой степени очистки от сопутствующих радионуклидов представляется весьма актуальной. В работе [3] сообщается о получении ^{236}Pu в результате фотоядерной реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$. Следует отметить, что данная реакция является одной из наиболее оптимальных для получения препаратов ^{236}Pu . Разделение продуктов реакции проводили методом анионообменной хроматографии на сильноосновном анионите Wofatit SBW в две стадии. Получен препарат ^{236}Pu с соотношением активностей $^{236}\text{Pu} : ^{238}\text{Pu} : ^{239}\text{Pu} : ^{240}\text{Pu} : ^{237}\text{Np}$, равным 1: ($\leq 1 \cdot 10^{-4}$): $1 \cdot 10^{-5}$: $1 \cdot 10^{-6}$: ($\leq 1 \cdot 10^{-4}$). Появление новых ионообменных и экстракционных смол стимулирует работу по созданию методик выделения, концентрирования и очистки изотопа ^{236}Pu для получения препарата с еще более низким содержанием примесных изотопов. Также была изучена возможность применения экстракционной смолы TEVA для разделения продуктов фотоядерной реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Получение ^{236}Pu . Изотоп ^{236}Pu получали в фотоядерной реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)^{236m}\text{Np} \rightarrow (\beta^-)^{236}\text{Pu}$. При облучении ^{237}Np фотонами отсутствуют каналы реакций, приводящие к образованию $^{238,239}\text{Pu}$, и изотопная чистота препаратов ^{236}Pu зависит от радиохимической чистоты исходного ^{237}Np , очищенного от примесных изотопов по методике, представленной в работе [3]. Мишень ^{237}Np массой 10 мг облучали фотонами тормозного излучения электронов на микротроне МТ-25 в течение 100 ч при токе электронов 15 мкА и максимальной энергии 25 МэВ. После окончания облучения мишень «охлаждали» в течение 15–30 сут до полного распада ^{236m}Np и короткоживущих гамма- и бета-излучателей и затем растворяли в 3 М HNO_3 .

Разделение и концентрирование ^{236}Pu . Колонку со смолой TEVA фирмы TRISKEM (2 мл, 100–150 мкм) на основе экстрагента Aliquat-336

(соли четвертичного аммониевого основания) [5] применяли для выделения нуклида ^{236}Pu из мишени, очистки от дочерних продуктов ^{237}Np и ^{236}Pu , а также продуктов вынужденного деления по реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$. Разделение проводили в две стадии.

На первой стадии к раствору, полученному после растворения мишени, добавляли до 0,1 М NaNO_2 , образец выдерживали при $T = 90^\circ\text{C}$ в течение часа (до прекращения выделения газа). Плутоний в этих условиях находится в валентном состоянии Pu(IV) , а большая часть нептуния — в состоянии Np(V) [6, 7]. Затем раствор переносили в колонку со смолой TEVA, предварительно промытую тремя колоночными объемами раствора 0,1 М NaNO_2 в 3 М HNO_3 . Колонку со смолой промывали последовательно 10 мл 3 М HNO_3 (10 порций по 1 мл каждая) и 5 мл 9 М HCl . Фракцию Pu смывали 5 мл 1 М HCl .

На второй стадии элюат, содержащий изотоп Pu и следовые количества Np , выпаривали до влажных солей. Остаток растворяли в 1 мл раствора 9 М HCl , содержащего 0,2 М NH_4I , и выдерживали при $T = 90^\circ\text{C}$ в течение часа для перевода Pu в III-валентное состояние. Затем раствор переносили в колонку со смолой TEVA, предварительно промытую тремя колоночными объемами 0,2 М раствора NH_4I в 9 М HCl . Из каждой фракции отбирали аликвоты для гамма- и альфа-спектрометрических анализов.

Спектрометрия. На всех стадиях разделения проводили гамма-спектрометрические измерения исходного и рабочих растворов с использованием HPGe -детектора фирмы Canberra с разрешением 1,5 кэВ на линии 1,33 МэВ (^{60}Co) и альфа-спектрометрические измерения на спектрометре Alpha Analyst фирмы Canberra с PIPS-детекторами с разрешением 13,4 кэВ и уровнем фона ≤ 1 имп./сут. Образцы для альфа-спектрометрических измерений готовили высушиванием аликвоты раствора объемом 5 мкл на стандартных полированных стальных дисках или стеклянных пластинах. Детектирование изотопов проводили по энергетическим линиям, представленным в таблице.

Энергетические линии изотопов [1]

Изотоп	$E(\gamma)$, кэВ	$E(\alpha)$, МэВ
^{228}Th	84,37	5,34; 5,42
^{232}U	57,78	5,26; 5,32
^{236}Pu	109,0	5,72; 5,77
^{237}Np	86,48	4,77; 4,79
^{233}Pa	311,98	—
^{137}Cs	661,66	—

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

На первой стадии очистки Pu(IV) экстрагируется смолой из растворов 2–4 М HNO₃ с высоким коэффициентом распределения (K_d не менее $2 \cdot 10^4$) [5]. В растворе, прошедшем через колонку, и промывном растворе 3 М HNO₃ содержалось 100% ¹³⁷Cs (1–3 мл) и 84% ²³⁷Np (1–4 мл), что

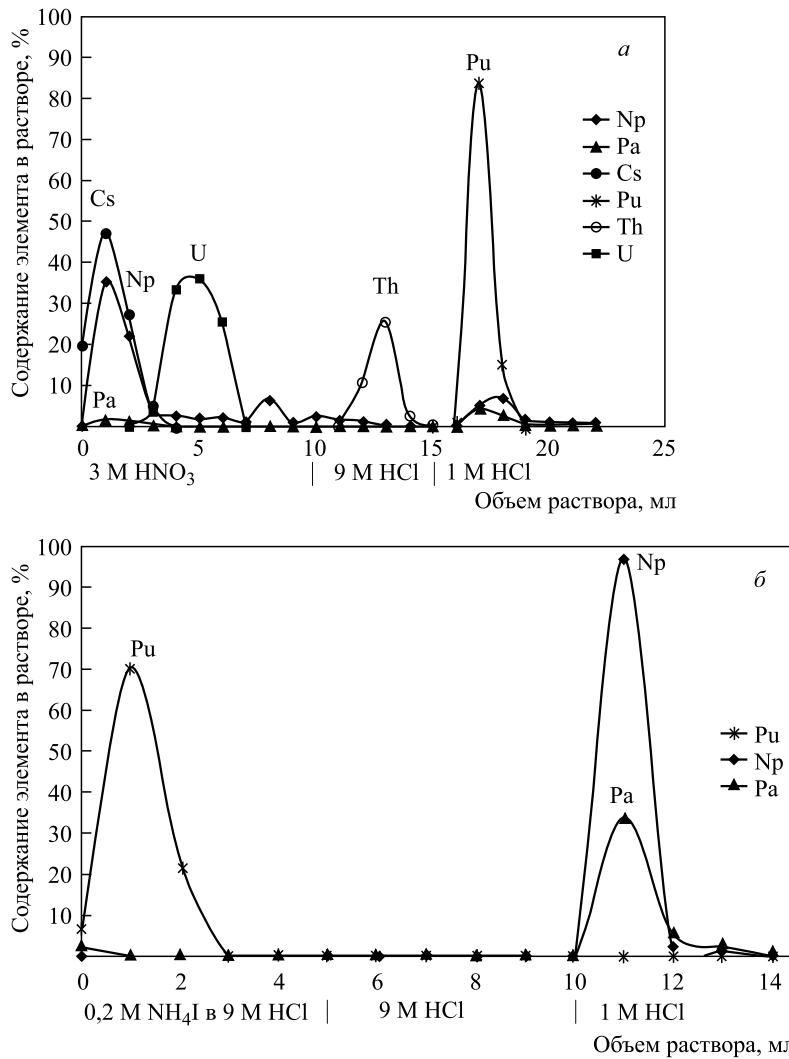


Рис. 1. Хроматограмма выделения и очистки изотопа ²³⁶Pu: *a* — стадия I; *b* — стадия II

указывает на нахождение основного количества Np в V-валентном состоянии в условиях эксперимента. Уран полностью вымывался из колонки в 3–6 мл 3 М HNO₃. При промывке колонки 9 М HCl объемом 2–4 мл вымывался Th. Фракция Pu после первой стадии содержала ²³⁶Pu (99,9 %), ²³⁷Np (16 %) и ²³³Pa (10 %). На хроматограмме данной стадии разделения (рис. 1, а) видно, что основная часть индикаторных количеств ²³³Pa извлекается смолой TEVA из раствора 3 М HNO₃ как за счет экстракционного механизма, так и за счет сорбции на носителе и удерживается на смоле при промывке 3 М HNO₃ и 9 М HCl [8,9]. В случае необходимости после выделения плутониевой фракции ²³³Pa, оставшийся на колонке, можно смыть смесью 1 М HCl и 0,01 М HF [8, 10].

На рис. 1, б показана хроматограмма II стадии разделения на колонке TEVA. Стадия II позволяет полностью очистить ²³⁶Pu от мешающих изотопов. На рис. 2 представлена общая схема выделения и очистки ²³⁶Pu от материала исходной мишени.

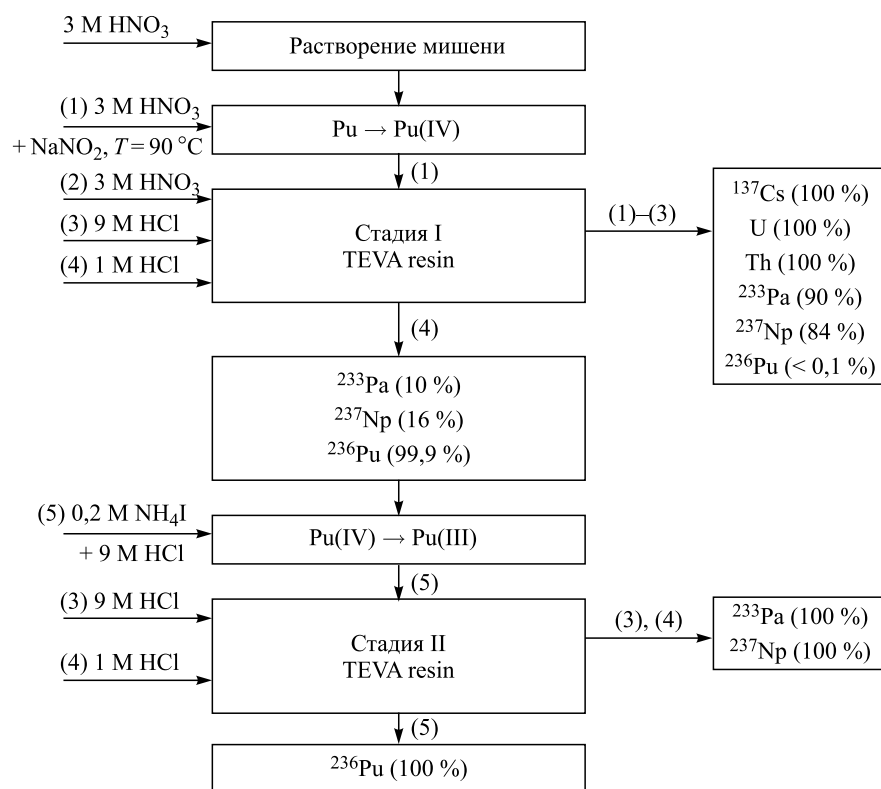


Рис. 2. Схема выделения и очистки ²³⁶Pu от материала исходной мишени

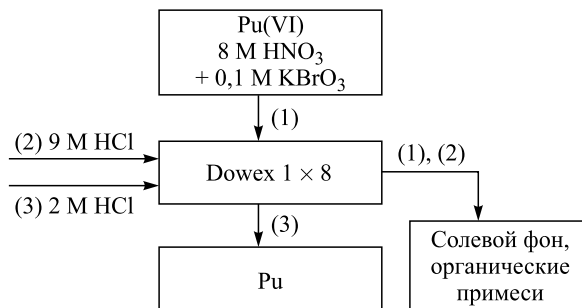


Рис. 3. Схема очистки ^{236}Pu от солевого фона и органических примесей

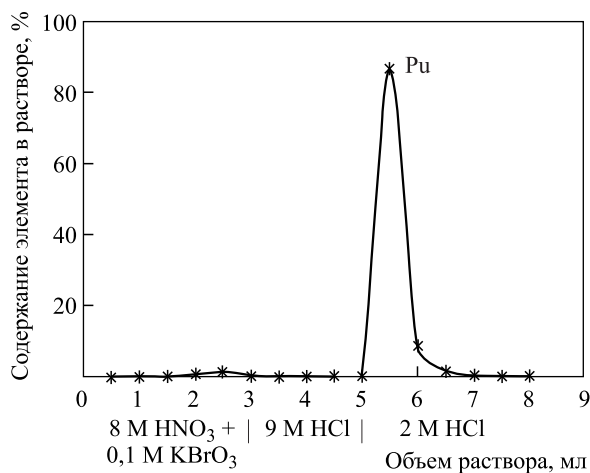


Рис. 4. Хроматограмма стадии очистки ^{236}Pu от солевого фона и органических примесей

При высокой активности препарата ^{236}Pu ($> 10^5$ Бк) возможно частичное разрушение органического экстрагента смолы TEVA. Для очистки от присутствия органических примесей во фракции Pu необходимо добавить к предложенной схеме стадию очистки конечного продукта на микроколонке ($h = 5$ см, $\phi = 2$ мм, $V = 0,15$ см) с анионом Dowex 1×8 (рис. 3 и 4).

Предложенная методика выделения и концентрирования позволила получить ^{236}Pu с содержанием примесей актиноидных элементов меньше чем 10^{-6} Бк/Бк.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные эксперименты показывают, что смола TEVA может быть применена для отделения изотопа ^{236}Pu , полученного в результате фото-

ядерной реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)^{236m}\text{Np} \rightarrow (\beta^-)^{236}\text{Pu}$, от материала мишени, дочерних продуктов ^{237}Np и ^{236}Pu и продуктов вынужденного деления ^{237}Np . Схема очистки включает две стандартные колонки со смолой TEVA. Для очистки от возможных органических примесей необходимо применять микроколонку с анионообменной смолой Dowex 1 \times 8.

Предложенная методика выделения и концентрирования позволила получить ^{236}Pu с содержанием примесей актиноидных элементов ниже уровня 10^{-6} Бк/Бк, что на два порядка меньше, чем в работе [3].

ЛИТЕРАТУРА

1. Селинов И. П. Изотопы. М.: Наука, 1970. С. 624–1231.
2. Трансурановые элементы в окружающей среде / Под ред. У. С. Хэнсона. М.: Энергоатомиздат, 1985. С. 344.
3. Дмитриев С. Н. и др. // Радиохимия. 1998. Т. 40, № 6. С. 533–537.
4. Jamana H., Jamamoto T., Moriama H. // Proc. of the Second Intern. Symp.: Plutonium in the Environment. Osaka, Japan, Nov. 9–12, 1999 / Ed. A. Kudo. P. 31–62.
5. Howitz E. P. et al. // Anal. Chem. Acta. 1995. V. 310. P. 63–78.
6. Милокова М. С. и др. Аналитическая химия плутония. М.: Наука, 1965. 452 с.
7. Михайлов В. А. Аналитическая химия нептуния. М.: Наука, 1971. 218 с.
8. Пальшин Е. С., Мясоедов Б. Ф., Давыдов А. В. Аналитическая химия протактиния. М.: Наука, 1968. 239 с.
9. Старик И. Е. Основы радиохимии. Л.: Наука, 1969. С. 173–186.
10. Korkisch J. Handbook of Ion Exchange Resins. V. II. Boca Raton, Florida: CRC Press, Inc., 1989. 316 p.

Получено 13 апреля 2016 г.

Редактор *Е. В. Григорьева*

Подписано в печать 05.08.2016.

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

Усл. печ. л. 0,56. Уч.-изд. л. 0,68. Тираж 195 экз. Заказ № 58876.

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

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/