

ВИКОРИСТАННЯ ПРОЦЕСУ СОРБЦІ ЙОДУ ДЛЯ ВИЗНАЧЕННЯ НЕЗАЛЕЖНОГО ВИХОДУ ^{135}Xe

Г.В. Васильєва, В.А. Пилипченко, І.В. Хімич

Ужгородський національний університет, кафедра ядерної фізики
88000, м. Ужгород, вул. Капітульна, 9а, Україна

E-mail: nphys@univ.uzhgorod.ua

Проведено модельні розрахунки відношень інтенсивностей γ -лінії ^{135}Xe (249,7 кеВ), випромінюваних водними колекторами уламків поділу до і після процесу сорбції. Показано чутливість таких відношень до величини незалежного виходу ^{135}Xe . Виміряні γ -спектри від контрольних проб та проб, що були в контакті з вугільним сорбентом СКС. За експериментальними відношеннями інтенсивностей γ -лінії ^{135}Xe визначено незалежний вихід ^{135}Xe в реакції поділу ^{235}U тепловими нейтронами. Одержаний результат, $0,50 \pm 0,15$, добре узгоджується з літературними даними, що вказує на перспективність пропонованого методу для дослідження енергетичних залежностей виходу ^{135}Xe у реакціях фотоподілу.

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 і 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 періодів реакцій фотоподілу та відносно малими величинами незалежних виходів.

У широко розповсюдженій гамма-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 з формуванням таких уламків.

Експериментальне вивчення незалежних виходів може здійснюватись різними методами: 1) методом масспектрометричного виділення заданих первинних уламків; 2) виділенням конкретних уламків та їх попередників хімічними методами; 3) з допомогою вимірювання спектрів характеристичного γ -випромінювання уламків та інші.

У гамма-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 положен-

ням максимуму кумулятивного виходу.

Останній метод вимагає тривалих вимірювань кривої розпаду, оскільки максимум у кривій розпаду слабо виражений. При залученні у методику визначення незалежного виходу γ -випромінювання попередника ^{135}Xe виникають неточності, пов'язані з врахуванням енергетичної залежності ефективності детектора та поправок на самопоглинання для різних γ -ліній.

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

Методика визначення незалежного виходу

Ланцюг бета-розпадів уламків з масовим числом $A=135$ показано на рис. 1.

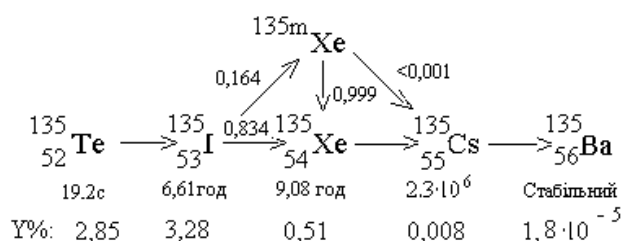


Рис. 1. Схема β -розпадів уламків поділу з масовим числом 135. Значення незалежних виходів уламків при поділі тепловими нейтронами (нижній рядок цифр) розраховані за формулою (7) при $Z_p=52,6$ і $\sigma=0,6$ [4].

Видно, що попередники ^{135}I достатньо короткоживучі і їх наявність можна не враховувати при розгляді залежностей від часу розпаду інтенсивностей γ -ліній ^{135}I (1131 кеВ) і ^{135}Xe (249 кеВ). Оскільки кумулятивний вихід ^{135}I очікується значно більшим за незалежний вихід ^{135}Xe [4], інтенсивність лінії ксенону після припинення опромінення зразка наростає, досягає максимуму при часі розпаду («охолодження») кілька сотень хвилин і далі спадає, наближаючись до форми кривої розпаду ^{135}Xe . Положення максимуму кривої розпаду залежить від величини незалежного виходу ксенону. Припустимо, що

розчин-колектор уламків зразу після припинення опромінення пропускається через фільтр з сорбентом, який селективно поглинає йод, мало впливаючи на вміст ксенону. Виміряна залежність від часу охолодження інтенсивності γ -лінії ^{135}Xe від сорбованого розчину (від s-проби), суттєво змінить свою форму. Очевидно, що відношення інтенсивностей γ -ліній ^{135}Xe для контрольного (для k-проби, q_k) і сорбованого (q_s) розчинів, $R=q_k/q_s$, буде теж залежати від величини незалежного виходу ^{135}Xe . Як впливає з модельних розрахунків, це можна використати для експериментального визначення незалежного виходу ^{135}Xe .

В основу модельних розрахунків покладені формули залежності швидкості лічби від часу охолодження (t), для контрольних проб:

$$q_p(t) = \lambda_p N_{0p} \cdot e^{-\lambda_p t} \quad (1)$$

(для попередника);

$$q_d(t) = \lambda N_0 \cdot e^{-\lambda t} + \frac{N_{0p} \lambda_p \lambda}{\lambda - \lambda_p} \cdot (e^{-\lambda_p t} - e^{-\lambda t}) \quad (2)$$

(для дочірнього уламка);

і відповідно для s-проб:

$$q_{ps}(t) = \lambda_p N_{0p} \cdot e^{-(\lambda_p + Sk_p)t}; \quad (3)$$

$$q_{ds}(t) = \lambda N_0 \cdot e^{-(\lambda + Sk_a)t} + \frac{\lambda_p \lambda}{\lambda - \lambda_p + Sk_a - Sk_p} \times N_{0p} (e^{-(\lambda_p + Sk_p)t} - e^{-(\lambda + Sk_a)t}). \quad (4)$$

Тут N_0 і N_{0p} —значення чисел ядер ізотопу та попередника у початковий момент часу [на момент закінчення опромінення у формулах (1,2), на початок процесу сорбції у формулах (3,4)], Sk_p і Sk_a — сталі вилучення за рахунок сорбції відповідно уламків попередника та дочірніх уламків. Ці сталі однозначно визначають коефіцієнти вилучення відповідних уламків. Значення N_0 і N_{0p} на момент закінчення опромінення залежать від числа актів поділу ядер урану за одиницю часу n_f , часу опромінення t_{op} , кумулятивного виходу попередника Y_p та незалежного виходу

даного ізотопу Y . Розв'язок відповідних диференціальних рівнянь при умові, що ізобари, які передують утворенню ядер попередника, мають періоди напіврозпаду значно менші за період напіврозпаду попередника, можна записати як:

$$N_{0p} = n_f Y_p \varepsilon_p \cdot \frac{1}{\lambda_p} (1 - e^{-\lambda_p t_{op}}); \quad (5)$$

$$N_0 = n_f Y_p \varepsilon_p \cdot \frac{1}{\lambda} \cdot \left[\frac{\lambda}{\lambda - \lambda_p} (1 - e^{-\lambda_p t_{op}}) - \frac{\lambda_p}{\lambda - \lambda_p} (1 - e^{-\lambda t_{op}}) \right] + n_f Y \varepsilon_k \cdot \frac{1}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t_{op}}). \quad (6)$$

На рис. 2 показані розраховані залежності відношення $R = q_k/q_s$ від значення незалежного виходу ^{135}Xe при часі опромінення 130 хв. та при однакових часах охолодження (300 хв.) для s- і k-проб.

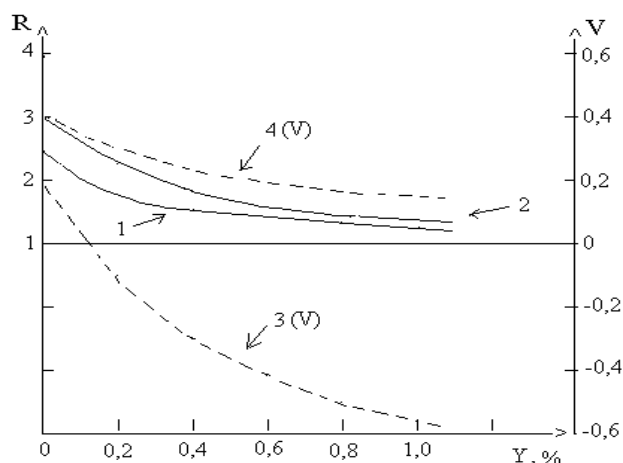


Рис. 2. Залежність відношень $R = q_k/q_s$ та $V = (q_k - 2q_s)/q_k$ від величини незалежного виходу ^{135}Xe : 1 – відношення R при коефіцієнтах вилучення йоду $K_I = 0,75$ та ксенону $K_{Xe} = 0$; 2 – відношення R при $K_I = 0,95$, $K_{Xe} = 0$; 3 – відношення V при $K_I = 0,75$, $K_{Xe} = 0$; 4 – відношення V при $K_I = 0,75$, $K_{Xe} = 0,5$.

Коефіцієнти вилучення йоду шляхом сорбції брались рівними 0,75 (крива 1) та 0,95 (крива 2) при відсутності вилучення ксенону. З рис. 2 видно, що відношення помітно зменшується при рості незалежного виходу, причому спад кривої при коефіцієнті вилучення 0,95 крутіший. Чутливішим до величини незалежного виходу ^{135}Xe є відношення $V = (q_k - 2q_s)/q_k$ – (криві 3, 4 на рис. 2). Наявність сорбції ксенону зменшує крутизну залежності. Отже, ви-

мірюючи експериментальні значення згаданих відношень та порівнюючи їх з модельними кривими, можна визначити величину виходу Y .

Експеримент

Багатокомпонентний розчин уламкових елементів одержувався шляхом нагромадження уламків поділу з реакції $^{235}\text{U}(n,f)$ у водному колекторі. Теплові нейтрони одержувались під дією гальмівного випромінювання мікротрона з реакції $^9\text{Be}(\gamma,n)$ [2]. Частина розчину пропускалась крізь фільтр (s-проба), що містив вугільний сорбент: стирол дивінілбензоатний співполімер (СКС), інша частина розчину служила контрольною пробєю. У роботі [3] показано, що вугільні сорбенти перспективні для вилучення ізотопів йоду. Вміст ^{135}Xe визначався по інтенсивності γ -лінії 249,7 кеВ. Спектр γ -квантів вимірювався напівпровідниковим спектрометром, як і в [3,5]. Для визначення вмісту попередника (^{135}I) вимірювалась інтенсивність γ -лінії 1131 кеВ.

У табл. 1 наведено типовий приклад виміряних інтенсивностей ліній. Експериментальне відношення швидкості лічби від k-проби (q_k) до швидкості лічби імпульсів від s-проби (q_s) виявилось рівним: $R = 4,9 \pm 0,5$.

Одержане значення перевищує розраховане навіть при стовідсотковому вилученні йоду. Слід припустити, що при динамічній сорбції з сорбентом СКС суттєво вилучається також ксенон. Розраховані коефіцієнти вилучення для йоду і ксенону з використанням значень інтенсивності лінії йоду виявились рівними відповідно $0,75 \pm 0,05$ та $0,5 \pm 0,06$. Крім того, необхідно враховувати вплив на експериментальне відношення вкладу від заважаючих уламків.

За літературними даними [4] 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

Табл. 1. Експериментальні значення сум імпульсів у максимумах при енергіях 249,7 та 1131 кеВ. Час нагромадження уламків 130 хв.

№ п/п	Енергія, кеВ	Час охолодження, хв.	Час вимірювання, хв.	Сума імпульсів у максимумі	Похибка суми	Тривалість сорбції, хв.
1	249	276	50	611	40	0
2	249	329	41	111	11	13,5
3	1131	175	30	141	13	0
4	1131	329	41	30	6	13,5

за 100 хв. охолодження не проявляються. Для наведених експериментальних даних слід враховувати лише вклад ^{92}Sr (період напіврозпаду 162,6 хв., енергія квантів 242 кеВ, квантовий вихід лінії 3%, кумулятивний вихід уламка 6,1%). Тому було проведено вимірювання інтенсивності лінії ксенону при 7 значеннях часу охолодження та визначено частку вкладу в експериментальний максимум ^{135}Xe шляхом аналізу залежності інтенсивності від часу охолодження [5]. Після введення поправки на вклад заважаючих уламків, основним серед яких був ^{92}Sr , було одержано експериментальне значення відношення: $V_{\text{exp}} = (q_k - 2q_s)/q_k = 0,19 \pm 0,035$.

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 сорбції ксенону. Порівняння експериментального значення V_{exp} з розрахованою залежністю дає значення незалежного виходу ^{135}Xe : $Y = 0,50 \pm 0,15$. Розподіл незалежних виходів по зарядовому числу уламків апроксимується кривою Гауса [4]

$$P(Z) = \frac{k}{\sqrt{2\pi(\sigma + \frac{1}{12})}} \exp\left[-\frac{(Z - Z_p)^2}{2(\sigma + \frac{1}{12})}\right]. \quad (7)$$

Для ^{135}Xe в реакції поділу ^{235}U тепловими нейтронами $Z_p = 52,6$ $\sigma = 0,60$ [4], що дає для незалежного виходу ^{135}Xe значення 0,51, яке у межах похибок відповідає одержаному експериментальному значенню. Відмітимо, що експериментальне

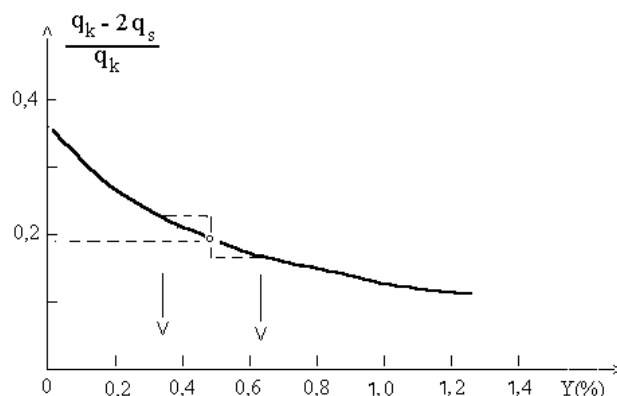


Рис. 3. Порівняння експериментального відношення V_{exp} ($V_{\text{exp}} = 0,19 \pm 0,035$) з розрахованою залежністю $V(Y)$ при $K_l = 0,75$, $K_{\text{Xe}} = 0,5$ та часах охолодження: к-проби 276 хв. і s-проби 328,5 хв. Стрілки вказують розкид можливих значень Y , зумовлений експериментальними похибками.

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, які викликають поділ ядер.

Точність визначення незалежного виходу може бути вищою, якщо підібрати сорбент (чи умови сорбції) з вищою селективністю по йоду.

Можна стверджувати, що запропонована методика експериментального визначення незалежних виходів може бути корисна для дослідження енергетичної залежності формування уламків ^{135}Xe при фотоподілі ядер.

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

Література

1. Бохінюк В.С., Осипенко А.П., Пилипченко В.А., Пилипченко Ю.В., Хіміч І.В. Структура енергетичних залежностей виходів уламків фотоподілу поблизу бар'єру поділу // Науковий вісник Ужг. унів. Сер. Фізика.- 1998.- №3.- С.30-32.
2. Водянчук М.В., Окунев О.Г., Осипенко А.П., Пилипченко В.А., Фрадкін О.М., Хіміч І.В., Яценко О.В. Про енергетичну залежність незалежного виходу 97-Nb при фотоподілі торію // Науковий вісник Ужг. унів. Сер. Фізика.- 2002.- №11.- С.111-115.
3. Васильєва Г.В., Осипенко А.П. Використання різних типів вугільних сорбентів для концентрування та радіоаналітичного визначення йоду // Науковий вісник Ужг. унів. Сер. Фізика.- 2001.- №10.- С.111-114.
4. Гангрский Ю.П., Далхсурэн Б., Марков Б.Н. Осколки деления ядер.- М.: Энергоатомиздат, 1986.- 136 с.
5. Васильєва Г.В., Стрелко В.В., Осипенко А.П. Дослідження сорбції мікрокількостей радіонуклідів із багатокомпонентних розчинів // Науковий вісник Ужг. унів. Сер. Хімія.- 2000.- №5.- С.130-133.

USE THE SORPTION PROCESS OF IODINE FOR DETERMINATION OF INDEPENDENT YIELD OF THE ^{135}Xe

H.V. Vasylyeva, V.A. Pylypchenko, I.V. Khimich

Uzhgorod National University, Department of Nuclear Physics9a,
Kapitulna str., Uzhgorod 88000, Ukraine
E-mail: nphys@univ.uzhgorod.ua

A model calculation of the ratio of the ^{135}Xe γ -line (249,7 keV) intensities from the fission fragments water collector before and after sorption was carried out. Gamma spectra from control samples and samples which contacted with the coal sorbent СКС was measured. The ^{135}Xe independent yield from the experimental of the ^{135}Xe γ -line intensities ratio was determined. The result $0,50 \pm 0,15$ is in good agreement with literature data. It shows that proposed method of investigate of the ^{135}Xe yield energy dependence in photofission reaction is perspective.