

第二屆和平利用原子能國際會議文獻

反應堆材料及冶金學

3

中國科學院原子核科學委員會編輯委員會編輯

科學出版社出版

目 录

同位素分离的方法

P/2217	稀土元素同位素的电磁分离法	1
P/102	硼10及其他稳定同位素的生产	10
P/1267	某些锂同位素分离过程的分离系数研究	24
P/1270	用于锂同位素分离的一个级联单元的研究	34
P/2086	蒸气流扩散法分离同位素	38

结构合金和包复合金

P/1993	用于反应堆结构的锆合金及钛合金冶炼的新成就	51
P/2046	锆合金的性能和结构	60
P/2054	锆及锆基合金的氧化过程的电子衍射与动力学研究	78
P/714	铝合金的高温水腐蚀	90
P/767	含铁与硅的铝在高温水中的腐蚀	101
P/2153	应用镁-铍合金作为核反应堆的材料	111
P/194	在乔克河对锆合金-2及铝镍及铝铁合金在高温水中性能所进行的研究	119
P/2190	循环加热及冷却对于各种金属及合金的尺寸和组织稳定性的影响	129

重 水 生 产

P/2323	用低温蒸馏法在工业上分离重氢	144
P/1261	法国的重水生产	155
P/2538	工业生产重水的液氢蒸馏法	180
P/1065	用蒸馏法和电解法浓缩重水	185
P/1000	用氢与催化剂的悬浮水液之间的高压交换来浓缩重水	194
P/1362	精馏液氢以制备氘的实验研究	203
P/1669	浓缩重水的电解装置的设计	211

其 他 材 料

P/1327	制造反应堆石墨的一些问题	222
P/2048	铍的熔炼和铸造	240
P/1272	高硼钢	246
P/1454	制造控制棒和屏蔽用的组合吸收中子材料	254
P/1326	动力反应堆防护混凝土在热循环负荷下的变形	266
P/705	钠-石墨反应堆材料工艺的最近发展	277
P/708	用于原子核反应堆的石墨的物理特性	291

P/715	反应堆材料的高温热力学性质	310
-------	---------------------	-----

辐照效应

P/1978	辐照对核动力反应堆结构材料的影响	316
P/190	中子辐照对铁素体钢铁机械性质的作用	332
P/306	燃料元件的评定和检验	339
P/81	辐照铀的肿胀及惰性气体在铀中的扩散	355
P/1924	γ 相铀合金的性质	386
P/30	被照射过的燃料元件所含的各种金属对不锈钢在硝酸中腐蚀的影响	397
P/617	燃耗对高温下工作的金属燃料元件的影响	410

反应堆材料及冶金学 1—3 集总目录

一、同 位 素 分 离

P/2217	稀土元素同位素的电磁分离法	第 3 集
P/102	硼 10 及其他稳定同位素的生产	第 3 集
P/1267	某些锂同位素分离过程的分离系数的研究	第 3 集
P/1270	用于锂同位素分离的一个级联单元的研究	第 3 集
P/2086	蒸汽流扩散法分离同位素	第 3 集

二、結構合金和包复合金

P/1993	用于反应堆结构的锆合金及钛合金冶炼的新成就	第 3 集
P/2044	锆及其合金的高温力学性质及在水, 蒸汽及气体中之抗腐蚀性	第 2 集
P/2046	锆合金的特性和结构	第 3 集
P/2049	锆与锆合金压力加工的一些问题	第 1 集
P/2054	锆及锆基合金的氧化过程的电子衍射与动力学的研究	第 3 集
P/2055	在常温与增高温度条件下含钼和铌的二元与三元锆合金的机械性能	第 2 集
P/714	铝合金的高温水腐蚀	第 3 集
P/767	含铁与硅的铝在高温水中的腐蚀	第 3 集
P/2153	应用镁-铍合金作为核反应堆的材料	第 3 集
P/194	在乔克河对锆合金-2 及铝镍及铝铁合金在高温水中性能所进行的研究	第 3 集
P/2190	循环加热及冷却对于各种金属及合金的尺寸和组织稳定性的影响	第 3 集

三、重 水 生 产

P/2323	用低温蒸馏法在工业上分离重氢	第 3 集
P/1261	法国的重水生产	第 3 集
P/2538	工业生产重水的液氢蒸馏法	第 3 集
P/1065	用蒸馏法和电解法浓缩重水	第 3 集
P/1000	用氢与催化剂的悬浮水液之间的高压交换来浓缩重水	第 3 集
P/1362	精馏液氢以制备氘的实验研究	第 3 集
P/1669	浓缩重水的电解装置的设计	第 3 集

四、其 他 材 料

P/1327	制造反应堆石墨的一些问题	第 3 集
P/2048	铍的熔炼及铸造	第 3 集
P/319	铍及氧化铍制备工艺的某些问题	第 1 集

P/320	无压燒結鈹粉	第 1 集
P/1454	制造控制棒和屏蔽用的組合吸收中子材料	第 3 集
P/1326	动力反应堆防护混凝土在热循环負荷下的变形	第 3 集
P/705	鈉-石墨反应堆材料工艺的最近发展	第 3 集
P/708	用于原子核反应堆的石墨的物理特性	第 3 集
P/715	反应堆材料的高温热力学性质	第 3 集

五、輻 射 效 应

P/2052	在中子照射的作用下金屬結構材料机械性能的变化	第 2 集
P/190	中子輻照对鉄素体鋼鉄机械性质的作用	第 3 集
P/306	燃料元件的評定及檢驗	第 3 集
P/81	輻照鈾的腫脹及惰性气体在鈾中的扩散	第 3 集
P/1785	鉛-鈾合金的物理冶金及性能	第 1 集
P/1924	γ 相鈾合金的性质	第 3 集
P/30	被照射过的燃料元件所含的各种金屬对不銹鋼在硝酸中腐蝕的影响	第 3 集
P/617	燃耗对高温下工作的金屬燃料的影响	第 3 集

六、其 他

P/1772	鈹原料的供应	第 1 集
P/2193	$\text{UO}_2-\text{Al}_2\text{O}_3$, UO_2-BeO , UO_2-MgO 二元状态图	第 2 集
P/2230	鈾、鈾及其合金的某些物理性质	第 2 集
P/2378	反应堆元件不損坏檢驗技术的新发展	第 1 集
P/1143	利用粉末冶金的渗透方法制备鈾合金	第 1 集
P/1544	高密度、高純度鈦酸盐陶瓷的电学性质	第 1 集

稀土元素同位素的电磁分离法*

阿列克塞也夫(Б. А. Алексеев) 布萊京(С. Ф. Булыгин)

索洛泰兰夫(В. С. Золотарев) 巴宁(Б. В. Панин)

契尔諾洛托夫(Е. С. Черноротов) 雪帕根(Г. Я. Щепкин)

对于被分离的稀土元素稳定性同位素的核性质的研究引起人們很大的兴趣。其中有一些具有意义是由于它們可以作为获得高比活性的放射化学純同位素的原始产物。

目前获得稀土元素同位素所采用的唯一方法是用电磁方法分离稀土元素。这一方法已被广泛采用。到最近为止沒有获得消息的仅仅是关于鎔(Eu), 铒(Er), 镱(Yb), 与镱(Lu)同位素的定量分离。

在这个报告中我們想根据在我們装置上进行工作的經驗来談談稀土元素的同位素分离的一些特点。这些特点恰巧在目前即在必須以足够数量的同位素浓集制剂系統地保証科学研究的时候, 具有重大意义。

起始工作物质的选择

已发表的有关分离稀土元素同位素的研究, 都基于采用相应的純元素的氯化物作为工作物质^[1-5]。在苏联同样也曾采用純的起始物质来分离鎔(Ge), 釹(Nd), 釷(Sm), 鉕及鎔的同位素。实际上, 用电磁方法进行同位素分离的大量經驗表明, 对于工作物质的基本要求之一是化学純度, 特别是不能有在蒸汽压力方面与它絕然不同的杂质。

然而由于获得大量的, 有时达几公斤的純稀土元素有困难, 及純的稀土元素, 特别是分布很稀少的純稀土元素的价格昂贵, 严重地限制了分离与应用稀土元素同位素的可能性。

但是, 在有些情况下, 我們认为放弃对起始工作物质的純度要求是可能的甚至是适宜的。实际上, 在分离貴重的或者难于获得的物质的同位素时, 很大的注意力不得不集中在消灭或者减少貴重材料的損耗上。如果考虑到全部工作(包括預先的化学处理以及沉积在分离仪器零件上未分离物质的回收)的复杂性, 有时用便宜得多的稀土元素浓縮物来代替难得的单一元素的物质似乎是合理的。此外, 当被分离元素与其伴随的元素的同位素間质量数差別相当大时, 同时会使得杂质分离成为单独的, 单一的元素。

这种方法最主要的缺点是: 不得不考虑到被分离出来的同位素不可避免地要被一些质量数与之相近的其它元素的同位素或同量异位素所污染。但是即使在这种情况下应用浓縮物还是显得有效的。这方面我們試图列举一些稀土元素同位素分离的例子。

由于某些稀土元素同位素相互間的分布(图1)恰当可以不用完全清除起始物质中的伴随稀土元素。电磁方法分离过程完成以后, 一个比較简单的任务是, 用已熟知的方法对不太复杂的(基本上是二元或三元)混合物进行化学分离。因为对于每一个被分离的同位

* Разделение изотопов редкоземельных элементов электромагнитным методом. (苏联版, 苏联科学家报告第6卷, 第2217号报告)

索來說这类杂质的重量数比起始物质的重量数要小几十倍，因此类似的清除工作純粹是屬於實驗室的操作，可是制备必要数量的純的工作物质則需要在工业規模的离子交換裝置上进行工作，这就增加了最后产物的价格。應該指出，在采用比較純的工作物质时，殘存于其中的少量杂质有时可能引起大量的分布很少的同位素的同量异位素污染，因此同样不可避免地要对其进行进一步的純化工作。

图 1

例如,在用质谱仪研究釹濃縮物的离子光譜的組成时,得到如下的結果(表 1):

表 1 釹濃縮物离子光譜随时间的变化
(蒸发 100 毫克氯化物)

离 子	总离子流各部分的百分数	
	开始蒸发时	蒸发終了时(经过 1 $\frac{1}{2}$ 小时)
La ⁺	19.3	2.2
Pr ⁺	8.4	0.7
Nd ⁺	56.2	9.0
Sm ⁺	15.5	83.9
Eu ⁺	沒有	4.2

蒸发終了时出现了蒸发开始时所沒有的¹⁾ 清晰的 Eu¹⁵¹ 与 Eu¹⁵³ 离子譜綫, 这說明可以利用所发生的分餾現象来分离散布非常稀少的元素同位素。

在这个报告中我們力求用两个例子来証实在用电磁方法分离同位素时采用稀土元素濃縮物的可能性。一个例子用 63% 釹(Gd)的濃縮物进行釹的同位素分离, 另一个用不同成份的釹的濃縮物来进行釹的同位素分离。釹的濃縮物我們由工业上获得, 它是純釹生产的半成品。釹的濃縮物是由我們实验室内生产“火石含金”(мишметалла)的废料中提取。大部分的鈾預先用溴酸盐法除掉。然后进行鎂与稀土元素复式硝酸盐的普通碎化結晶。

工作物质与以前一样, 采用无水的氯化物, 該氯化物是通过蒸发相应的盐酸溶液并在 500°C 氯化氢流中进行最后脫水而获得的。

装置与工作规范的介绍

釹同位素的分离是在具有高色散的径向对称磁場的装置上^[6]与具有平面平行磁場的大的装置上^[7]进行的。

装置的基本数据

装 置	离子束聚 焦的角度	色 散 1% $\Delta m/M$	稳 定 度 (%)		零軌道的半径 (毫米)
			磁 場	电 場	
径 向 的	225°	20	0.005	0.01	1300
面 平 行 的	180°	9	0.02	0.03	900

为了分离稀土元素同位素采用气体放电离子源。其出口狭縫在径向的装置上为 100 × (1—1.5) 毫米², 在大型的装置上为 180 × 2 毫米²。

由于阴极活化的結果, 稀土元素氯化物上电弧的燃烧是不稳定的。为了消除不稳定現象在阴极块上稍稍作了改变。

在分离过程中离子源的典型规范及收集器上离子流的数值見表 2:

1) 在起始濃縮物中鈾的存在用分光光度計方法也未曾发现。

表 2

元 素	起始物质 中元素的 含量	电 弧		电 压		收集器上 离 子 流 毫安	源的效率, 按收集器上 离子流 %	源工作的 持久时间 小时	箱中的压力 ×10 ⁻⁵ 毫米 水银柱高
		电 流 安培	电 压 伏	加 速 电 压 千伏	聚 焦 电 压 千伏				
在 径 向 装 置 上									
钹	45—55%	0.5	400	29	4	4—6	3—5	10—20	0.1—1
钷	63%	0.8	400	29	7	4—6	3—8	10—20	0.6—1
在具有平面平行场的装置上									
钹	73%	1.2	200	32	5—6	15—36	4—10	15—40	1.0—1.4
钷	98%	0.5	120	30	3—5	10—17	3—8	10—20	0.9—1
钷	99%	0.4	200	30	5—8	15—20	3—7	10—20	0.9—1

钷同位素的分离

用 63% 浓缩物作钷同位素分离是在具有径向对称磁场的电磁装置上进行。

为了制备工作物质采用下列成份的浓缩物

Gd_2O_3 — 63%

Nd_2O_3 — 2%

Sm_2O_3 — 22%

Tb_4O_7 — 4%

Dy_2O_3 — 5%

Eu_2O_3 — 0.3%

Y_2O_3 — 1%

无水氯化物是在干燥箱内装进镍坩锅, 每份 20—30 克。

在有些时候只用非常少量(几百毫克)的物质进行工作。这时放电在钷爆物质(氯化钷)的蒸汽中进行。而且仅在规范建立以后才将被分离的稀土元素氯化物蒸汽引入。为了捕集较重的钷爆物质的分子离子采用了特殊的方法。

离子收集器的箱用铜制成。用浓硝酸腐蚀的方法把被分离的同位素从箱中取出。用氨来进行二三次稀土氢氧化物的沉淀, 从而清除铜。

用草酸盐沉淀法去掉无关的杂质使稀土元素进一步纯化。

依据稀土元素浓缩物的相对含量及同位素的天然分布, 可以估计出在用电磁装置完全分离同位素的理想情况(即忽略邻近同位素污染的可能性)中, 同位素分离后的预期纯度。

对于质量数在 152 到 160 范围内的同位素, 这样的计算数据列于表 3。

从表 3 中可以看出, 有些同位素可利用没有被污染的其他稀土元素马上获得。对于 $Gd^{152}(Sm^{152})$, $Gd^{154}(Sm^{154})$ 及 $Gd^{160}(Dy^{160})$ 将发生颇大的同量异位素污染。从离子收集器中取出的含有浓集同位素 Gd^{152} , Gd^{154} , Gd^{155} , Gd^{158} 与 Gd^{160} 的馏份用离子交换法进行预先化学纯化。离子交换树脂——多维克斯-50(Dowex)——采取铵型; 洗提用 pH 值为 3.9 的 0.5% 乙二胺四醋酸溶液进行。各道工序的结果列在表 4 中。

从表 4 中可以看出, 除钷同位素外同时成功地分离出一些其它元素的同位素 (Sm^{152} ,

表 3 质量数在 152—160 范围内钆浓缩物的元素与同位素成份

元素成份	同 位 素 成 份				
	质 量 数	一般含量 %	同 位 素	同 位 素 含 量	
				在质量数为152—160 的馏份中的含量	给定质量数中的含量
Sm 13.4	152	7.44	Sm ¹⁵²	7.28	97.8
Eu 0.2			Gd ¹⁵²	0.16	2.2
Gd 78.6			Eu ¹⁵³	0.19	100
Tb 4.9	153	0.19	Sm ¹⁵⁴	6.16	78
Dy 2.9	154	7.85	Gd ¹⁵⁴		
			Gd ¹⁵⁵	1.69	22
	155	11.57		11.57	100
	156	16.08	Gd ¹⁵⁶	16.08	99.98
			Dy ¹⁵⁶	0.003	0.02
	157	12.31	Gd ¹⁵⁷	12.31	100
	158	19.55	Gd ¹⁵⁸	19.54	99.97
			Dy ¹⁵⁸	0.006	0.03
	159	4.89	Tb ¹⁵⁹	4.89	100
	160	17.34	Gd ¹⁶⁰	17.20	99.2
			Dy ¹⁶⁰	0.14	0.8

表 4 经过离子交换纯化以后钆同位素浓集物的馏份的成份

浓集的同位素	纯化前产物的元素成份		分馏	分馏产物 %	经纯化产物的元素成份 (由质谱分析及分光光度计测量所得的结果)
Gd ¹⁵²	Sm	87%左右	I	15	Sm 30%左右 ¹⁾
	Gd	13%左右			Gd 70%左右
			II	84	Gd 一点痕迹
Gd ¹⁵⁴	Sm	60%左右	I	28	Sm 99.9%
	Gd	40%左右			Sm 一点痕迹
			II	72	Sm 88.5%
Gd ¹⁵⁵	Sm	1.5%	I	98	Gd 11.3%
	Gd	98.5%			Sm 未察觉
Gd ¹⁵⁸	Gd	97%	I	94	Gd >99.5%
	Tb	3%			Tb 0.1%
	Dy	<0.1%			Dy <0.1%
Gd ¹⁶⁰	Gd	94%	I	8	Dy ~75%
	Dy	6%			
			II	92	Gd >99.9%
					Dy <0.1%

1) 试验性的测定。

Sm¹⁵⁴)。在纯化 Gd¹⁶⁰ 时获得的第一次馏份中应该含有 (按计算) 约 75% 镱 (Dy), 其中主要是 Dy¹⁶⁰, 这表示能够同时分离这个同位素。Gd¹⁵² 与 Gd¹⁵⁴ 馏份的最后纯化不会发生任何特殊的困难。用已很熟知的方法进行。

为了鑑定所得的浓缩物,将所得制剂的同位素成份列于表 5。

表 5 从釐的 63% 浓缩物中进行同位素分离时所获得的浓集制剂的同位素成份

浓集的同位素	质 量 数 与 其 含 量 (%)									
	152	154	155	156	157	158	159	160	161	162
Gd ¹⁵⁴	—	56.4	23.8	13.4	6.4	<0.1	—	—	—	—
Gd ¹⁵⁵	<0.1	0.5	97.3	1.7	0.5	<0.1	—	<0.1	—	—
Gd ^{156 1)}	—	<0.1	2.9	95.5	0.2	1.6	<0.1	—	—	—
Gd ¹⁵⁷	—	<0.1	0.6	1.7	91.4	5.2	—	1.1	—	—
Gd ^{158 2)}	—	—	—	—	—	97.4	—	2.6	—	—
Gd ¹⁶⁰	—	—	—	—	—	—	—	99.9	—	—
Sm ¹⁵²	96	4	较少	—	0.1	—	—	—	—	—

1) Sm 含量 <0.1%, Dy <0.02%.

2) Dy 含量 <0.1%.

釐同位素的分离

在具有径向对称磁场的装置上分离时采用含量为下列数值的不同成份的浓缩物:

La 15% 以下

Pr 5% 以下

Nd 45—55%

Sm 15—40%

从收集器箱中取出的产物,在尚未清除掉釐混合物之前对其进行质谱分析,其结果列在表 6 中。

表 6 用具有高分辨率的装置分离釐浓缩物时所得浓集制剂的各质量数的成份

箱	质量数与它的含量%							被分离的氧化物 毫克
	142	143	144	145	146	148	150	
Nd ¹⁴²	91.0	4.5	3.3	0.6	0.6	<0.1	—	351
Nd ¹⁴³	2.5	91.0	5.8	0.6	0.1	<0.1	—	250
Nd ¹⁴⁴ + Sm ¹⁴⁴	0.9	3.8	90.2	3.8	1.2	<0.1	—	515
Nd ¹⁴⁵	—	<0.1	2.3	84.6	12.3	0.8	0.1	231
Nd ¹⁴⁶	—	<0.1	0.5	1.2	96.2	1.6	0.5	520
Nd ¹⁴⁸ + Sm ¹⁴⁸	—	—	<0.1	—	—	97.2	2.1	202
Nd ¹⁵⁰ + Sm ¹⁵⁰	—	—	<0.1	—	0.3	1.0	98.7	275

附註: 质量数为 147 的同位素的收集没有进行。在被分离的同位素产物中没有发现具有这种质量数的同位素。

按分光光度计测量的数据,在浓集的釐试样中釐的含量如下:

在试样 Nd¹⁴² 与 Nd¹⁴³ 中为 0.2%

在试样 Nd¹⁴⁵ 中为 0.3%

在试样 Nd¹⁴⁶ 中为 0.7%

在试样 Nd¹⁴⁴ 中为 4%¹⁾

1) 同量异位素加在内。

在試样 Nd^{150} 中为 31%¹⁾

在試样 Nd^{148} 中为 40%¹⁾

在大的电磁装置上进行釹同位素分离时离子流平均为 20 毫安, 装入离子源內的稀土元素氯化物达 100—110 克。

离子收集器供收集釹同位素以及鈰和鈾的同位素用, 因此有 13 个箱。

应用在这个装置上进行釹同位素分离的浓缩物具有下列的成份:

La_2O_3 — 8%
 Pr_6O_{11} — 7%
 Nd_2O_3 — 74%
 Sm_2O_3 — 9%
 CeO_2 }
 Eu_2O_3 } 2%
 Gd_2O_3 }
 Tb_4O_7 }

浓缩物中质量数在 141—154 范围内的元素的成份与同位素的成份列于表 7。

表 7 釹浓缩物中质量数在 141—154 范围内的元素及同位素的成份

元素成份	同 位 素 的 成 份				
	质 量 数	一般含量 %	同 位 素	同 位 素 含 量	
				在质量数为141—154 的 馏 份 中 %	在给定质量数中
Pr 8% Nd 82% Sm 10%	141	7.88	Pr^{141}	7.88	100
	142	22.31	Nd^{142}	22.31	100
	143	10.03	Nd^{143}	10.03	100
	144	19.96	Nd^{144}	19.63	98
			Sm^{144}	0.33	2
	145	6.82	Nd^{145}	6.82	100
	146	12.71	Nd^{146}	12.71	100
	147	1.30	Sm^{147}	1.30	100
	148	5.82	Nd^{148}	4.70	81
			Sm^{148}	1.12	19
	149	1.40	Sm^{149}	1.40	100
	150	5.36	Nd^{150}	4.61	88
			Sm^{150}	0.75	12
	152	2.66	Sm^{152}	2.66	100
	154	2.03	Sm^{154}	2.03	100

由于坩埚材料的还原作用氯化物在蒸发时成份可能改变, 这是鈰, 鈾, 釹这类元素的氯化物的特殊性质, 对于这些元素, 二价状态的存在是其特征。当純的三氯化鈰在不銹鋼制的坩埚中蒸发时, 在离子譜綫中总是发现很强的 Fe^+ 譜綫。沒有蒸发的残余部分常常不少于 40—50%, 而且是 SmCl_2 。在鐳坩埚中蒸发較好, 但在这种情况下发现 Sm^{III} 还原成 Sm^{II} 。因此, 可以預期到当用含有相当量鈰的釹浓缩物进行工作时, 起始物质与被蒸发

1) 同量异位素加在內。

物质的成份会有明显的差别。如果按照由离子收集器引出的第一次产物的化学成份的大略的测定来判断,则可发现在用浓缩物工作时这些产物明显地被钆所贫化。如果首要的任务是分离钆同位素(如象我们的情况那样),那末这种情况是有利的。如果同时也需要分离存在于浓缩物中所有的其它元素同位素,那末坩埚的材料应该由其它没有还原性质的材料制成。

只有质量数为 144,148,150 的同位素才有钆与钆的同量异位素杂质。但是应该估计到其它质量数相近的同位素对该同位素的污染。由于质谱仪上谱线很多,同位素分析初次浓集的标本是有困难的,通常只对那些污染不多的馏份进行分析(表 8)。所有其他的标本都是用分光光度计进行分析,用离子交换进行纯化,然后才能用一般质谱分析方法进行分析。

因为某些馏份的重量通常不超过 4—5 克,因此对其进行纯化不会发生很大的困难。对于数量少的馏份(如 R_2O_3 小于 1.5 克)采用内径为 11 毫米,树脂层高度为 50 厘米的柱(其中的树脂为 NH_4 型,颗粒大小为 140—200 目),进行纯化。我们主要采用 Ky-2 树脂进行纯化,在有些情况下也采用道维克斯 50 树脂。这两种树脂的工作规范都是一样的,它们的性能没有什么明显的差别。洗涤时采用 0.25% 乙二胺四醋酸溶液 (pH 4.05)。洗涤速度—0.3 毫升/厘米²分。流出的溶液被馏份吸收了 100—500 毫升。分离是精确的,通常 85—90% 的起始物质具有 99.9% 的纯度。混合的馏份在尺寸较小的柱中另行纯化。

在纯化重量大于 1.5 克的同位素时,所用的离子交换柱的直径为 20 毫米,高为 80 厘米。Ky-2 树脂取钆型,颗粒大小为 70—100 目。冲洗规范及冲洗的溶液与用小柱纯化时相同。

表 8 在大的电磁装置上用钆的浓缩物所获得的浓集的钆与钆标本中同位素与化学的成份

箱	质 量 数 及 其 含 量 %													化学污染
	142	143	144	145	146	147	148	149	150	151	152	153	154	
142	98.2	5.4	1.4	0.3	0.1	—	—	—	—	—	—	—	—	0.1
143	1.2	95.4	2.4	0.8	0.2	—	—	—	—	—	—	—	—	0.1
145	1.1	1.9	3.0	92.0	1.9	1.1	—	—	—	—	—	—	—	0.1
146	—	0.2	0.5	1.1	97.8	0.4	—	—	—	—	—	—	—	0.1
147	5.4	3.0	5.1	2.9	19.8	39.9	21.5	—	2.4	—	—	—	—	55
149	—	—	—	—	—	0.6	0.7	90.7	4.2	2.0	1.8	—	—	5.59
152 ¹⁾			0.1			0.5	0.3	0.5	0.4	—	97	—	1.3	0.1

1) 经化学纯化后。

结 论

报告中所引用的结果表明,在分离稀土元素同位素与散布得很稀少的元素的同位素时,不采用纯的元素作起始工作物质而采用容易得到的浓缩物是可能的,适宜的。

这一方法可以大大减少在起始物质上的开支,同时可以减少一般化学工艺方面的工作量。

在利用浓缩物时,同时也可能分离伴随元素的同位素。

稀土元素同位素的分离工作目前正在继续进行,本报告应该看成是一个初步的报导。

参 考 文 献

- [1] Keim, *Nucleonics*, 10, No. 8, 29-31 (1952).
- [2] Keim, *J. Appl. Phys.*, 24, 1255-61 (1953).
- [3] Keim, *Nature*, (London), 175, 98-101 (1955).
- [4] Weaver B. *Electromagnetically enriched Isotopes and mass Spectrometry* (ed. M. L. Smith), P. 80-82, London, 1956.
- [5] Dawton, Smith. *Quarterly Rev.*, London, Chem. Soc. 1955, No. 1, 1-22.
- [6] Арцимович Л. А., Щепкин Г. Я., Жуков В. В., Маков Б. Н., Максимов С. П., Малов А. Ф., Никуличев А. А., Панин Б. В., Брежнев Б. Г., *Атомная Энергия*, 1957, 3, № 12, 483-491.
- [7] Золотарев В. С., Комар Е. Г. "Разделение изотопов на электромагнитных установках в Советском Союзе". Доклад, представленный на женеvскую конференцию по мирному использованию атомной энергии, 1958 г.

(譯自俄文預印本)

硼 10 及其他稳定同位素的生产*

爱德孟斯 路維利斯**

引 言

近年来,有关稳定同位素的分离問題已經引起人們极大的注意,若干同位素分离裝置的設計和操作在文献中也有过十分詳細的介紹。在大多数情况下,可以根据一定的生产条件,設計出一种由許多分离单元組成的級联系統。

目前,特别是在核子工程中,为了改进或代替現有的材料和材料制取的方法,正在对同位素浓集材料的性质进行研究,因此要求供应少量的稳定同位素;为了滿足各方面研究的需要,这些同位素应尽可能是各种各样的化合物。此外,同位素的供应量也应很快地增长到所需要的水平。

为了解决上面这个問題,本文主要是围绕能生产高浓物质的分离柱的設計进行一系列探討,这种分离柱还应易于制造和操作。为了增加生产量,我們可以增加分离柱的数目,因为,分离柱具有某些共同特性而可以联結到同一控制系統內。

曾經討論了以克計量的同位素硼 10 的生产,这个生产是在使用两个填料分离柱串联的同位素化学交换系統中實現的。同位素 B^{10} 原先只用在热中子测量的高效率正比計数管上(以三氟化硼的形式),而現在却已經扩展到包括反应堆的屏蔽及其安全控制棒的許多应用上去了。

除了极少数个别情况之外,实际上,同位素分离所得的物质本身常常是不能直接应用到有关同位素的研究或生产操作上去的。如果化学处理費用不貴的話,可以用化学处理法將浓集产物进一步轉化为可用的形式。上述情况严重地限制了小規模廉价生产稳定同位素的可能性,因为分离产品的最終价格与把这种同位素加工成可应用的形式所需的費用有关。

硼 10 的 生 产

硼有两种稳定同位素,其质量数分別为 10 和 11,它們的天然丰度是 18.8% B^{10} 和 81.2% B^{11} 。可以看出,与其他元素的稳定同位素比起来,硼的天然丰度值是相当高的。如果我們再选上一个具有較大分离系数的分离过程,那么分离系統的设备就能得到大大簡化。各种硼化合物及不同分离过程所得的分离系数已列于表 1。

很显然,采用三氟化硼乙醚絡合物是最优越的。因此,曾以三氟化硼乙醚絡合物的分离裝置作为設計的基础。英国哈威尔原子能研究中心的麦克雷依(R. W. McIlroy)在1951年最先进行过这方面的工作。他設計建造成了一个試驗性分餾柱,其設計的生产量为0.5克硼/天,产品浓度为 99% B^{10} 。这个試驗柱的詳細情况已在文献[4]中有过报导。简单

* Production of Boron-10 and other stable isotopes (第 4 卷 102 号报告, 英国)。

** A. O. Edmunds, F. C. Loveless, 新阿丁頓(New Addington), 克劳伊登(Croydon)市, 塞里 (Surrey) 郡, 英国二十世紀电子有限公司。

表 1

化 合 物	分 离 方 法	分 离 系 数 α	参 考 文 献
$B^{10}F_3 : B^{11}F_3$	分 餾	1.0075	[2]
$B^{10}Cl_3 : B^{11}Cl_3$	分 餾	1.003	[1]
$B^{10}F_3(C_2H_5)_2O : B^{11}F_3(C_2H_5)_2O$	化 学 交 換	1.016	[3]
$B^{10}F_3(CH_3)_2O : B^{11}F_3(CH_3)_2O$	化 学 交 換	1.016	[3]

說来,它是由上部长为 100 厘米,直径 37 毫米的汽提段和下部长为 400 厘米,直径 25 毫米的精餾器組成的填充分餾柱。該柱的填料采用 1/16 吋的德克松 (Dixon) 金属网状环 (这是一种效率极高的填料)。在压力为 20 毫米水銀柱下操作时,所采用的沸騰速率是 120 克/小时,理論塔板当量高度 (H. E. T. P.) 是 1.2 厘米,产品浓度为 95% B^{10} 时的生产量是 0.5 克/天。在这个柱中采用了气相餾料及取料技术,分餾柱頂部压力控制装置以及沸騰器溫度控制系统。这些技术将在本文的其他部分再討論。

有关这个試驗工厂的装置以及从这些試驗装置中所得的装置和材料的主要特点可以总结如下:

(1) 这个系統应用的范围只能局限于最大沸騰器的溫度以下,以便减少乙醚絡合物热分解产物的生成。分解速率显然取决于所用原料的性质,一般要求在整个操作阶段沸騰器內分解产物的浓度应保持較低的水平。因此我們采用降低輸入电能的办法使沸騰器在恒定的溫度 75°C 下工作。实际上,这就意味着用降低生产率的办法来保証 必須的浓集度。

(2) 由于必須保証低于极限操作溫度 75°C,这就使得沿分餾柱长度上的溫度降不会很大,因此与溫度差有关的柱內压力降也受到限制,这就决定了沸騰速率的最大值。

(3) 在分餾柱操作系统中已經十分成功地应用了气相餾料和取料技术,它的基本要求是对分餾柱頂部压力进行严格的控制。改变在恒定电能輸入条件下工作的沸騰器的溫度,就可以控制餾料速率。

(4) 鑑于要在較低的操作溫度下具有尽量高的沸騰速率,沸騰器的設計就具有特別重要的意义。

分餾柱填料的选择,需要考虑到各方面因素相互的影响。在一定的操作条件下,必須求得最少的理論塔板数,以达到所需的分离要求。同样,为了保証产品浓度尽量高,首先重要的一点是要求产品出料速率只占沸騰速率的极少一部分。这就要求分餾柱采用填料,以便保証其合理的沸騰速率下分餾柱具有很大的理論塔板数。

采用乙醚絡合物时,由于上面提到的溫度的限制,这就使得与柱內压力降有关的最大沸騰速率也受到了限制。在我們所討論的分离柱中,最有用的参数之一是在一定沸騰速率下每块理論塔板的压力降。分离柱是否采用填料以及进一步采用什么样的填料,这完全要依賴于上面这个特性参数而定。

对各种适合的填料进行比較的結果表明,德克松填料对完成分离的目的来說是最好的一种填料,但它价格太貴,而且一时又难买到。另一种填料是尺寸为 $\frac{1}{4}$ 吋 $\times$ $\frac{1}{4}$ 吋的多孔不銹鋼填料 (美国,宾夕法尼亚州大学科学发展协会出品)。从理論塔板当量高度来看,这种填料不及德克松填料那么好,但它有另一个优点,就是在較低的压力下具有很高的沸騰

速率。

在一定的溫度降范围内，要增加分离柱內物料的輸运量，最明显的办法是加大柱直径。同时，理論塔板当量高度也随直径的增加而增加。除此之外，在沸騰速率不显著的情况下，为了要保証高效率的利用填料，还必須在分离柱上每隔一定的間隔装上液气分配器。对于直径为 2 吋的分离柱，在所采用的沸騰速率下，其理論塔板当量高度不可能小于 2 吋。

根据上面試驗柱所得的資料，曾經建造了一个由两根分离柱組成的分离装置；第一根柱直径为 4 吋，用天然丰度原料进行餵料，第二根柱直径为 2 吋，用第一根柱的浓集产品进行餵料。2 吋分离柱采用高效率的多孔填料，而 4 吋分离柱則采用我們自己制造的价格低廉的填料。两根柱都有自己的精餾段和汽提段。采用这种含有两段的分离柱，可以指望，在小柱中的理論塔板数可以达到 200，在大柱中也可以达到 50—60。

进一步的設計是保証沸騰器在恒定的电能輸入下工作，并且控制系統的設計应使得最大沸騰溫度为 80°C 。在正常工作时，沸騰溫度为 75°C ，柱頂部压力保持在 20 毫米水銀柱(參看表 2)。

表 2 設 計 規 格 一 覽 表

	分 餾 柱	
	直 径 4 吋	直 径 2 吋
沸騰器溫度	75°C	75°C
沸騰器压力	53毫米	53毫米
冷凝器溫度	$10-15^{\circ}\text{C}$	$10-15^{\circ}\text{C}$
柱頂部压力	20毫米汞柱	20毫米汞柱
精餾段填充高度	22呎 2 吋	23呎 4 吋
汽提段填充高度	9 呎 8 吋	8 呎 10 吋
填料	見附录 I	多孔填料 $\frac{1}{4}$ 吋 $\times \frac{1}{4}$ 吋
生产量	56克	6 克
浓集度	35%	95%
理論塔板数 N°	55	200

物 料 的 利 用

三氟化硼乙醚絡合物是用气体三氟化硼和乙醚在室溫下制得的，所得的粗产品在用到分离装置中去之前还要进行真空蒸餾。在每天生产浓集度为 90% B^{10} 的产品 6 克时，4 吋分离柱所需要的餵料速率为 1.2 升/天。絡合物的利用率为 12.5%。 B^{10} 被提出后的貧化物料是一种純度极高的硼产品，它可以当作催化剂在商业上出售。这样一来，分离这种同位素所花的成本費就可以因副产品的出售而得到部分回收。

设备的一般描述

車間建筑物总高度应为 40 呎。如果适当縮小分离柱支撑部分与直立部分的尺寸，那么采用 36 呎也可以滿足要求。由于取样点、汽液分配器、沸騰器以及冷凝器占据了一定位置，所以柱中实际填料层高度至少要减去 3 呎。最后定型的装置尺寸如下：第一个分离柱由直径各为 4 吋和 2×3 吋的两段組成，柱总高度为 36 呎，其中填料高度約 33 呎；第二