

Рис. 3. Спектры тепловых нейтронов из касательного и радиального каналов:

○ — касательный канал; ● — радиальный канал; --- — максвелловское распределение при $T_0 = 320^\circ \text{K}$; — — максвелловское распределение при $T_0 = 365^\circ \text{K}$.

на приводить к тому, что для рассеивателей малой длины ($t \leq \lambda_{\text{ТР}}$) спектры нейтронов должны отличаться от максвелловского, так как условие $t/\lambda_{\text{ТР}} \approx (4 \div 5)$ не выполняется одновременно для нейтронов всех энергий. Представленный на рис. 2 спектр тепловых нейтронов, полученный при использовании в качестве рассеивателя графита малой длины ($t \approx \lambda_{\text{ТР}}$), под-

тверждает это предположение. Максвелловское распределение рассчитано для $T_0 = 290^\circ \text{K}$ и привязано к экспериментально измеренному при энергии нейтронов, соответствующей максимальному потоку. Обращает на себя внимание резкое уменьшение величины потока нейтронов в области длин волн, соответствующих критической длине волны, равной удвоенному максимальному рассеянию $d_{\text{макс}}$ между кристаллическими плоскостями графита. В случае длинных рассеивателей этот скачок выражен слабее.

Представляло интерес сравнить спектры тепловых нейтронов касательного и радиального каналов реактора. Результаты таких измерений, выполненных при мощности реактора 6 Мвт при одинаковой коллимации пучка, показаны на рис. 3. Как видно, спектры отличаются и описываются максвелловским распределением при $T_0 = 320^\circ \text{K}$ и $T_0 \approx 365^\circ \text{K}$ для касательного ГЭК-5 (графит, $t = 120 \text{ мм}$) и радиального ГЭК-3 каналов соответственно. Этот результат находится в согласии с данными работы [2], в которой проводилась оценка температуры спектров касательного и радиального каналов интегральным методом с помощью золотых фольг. Отмеченное смягчение спектра тепловых нейтронов, очевидно, является одним из характерных свойств нейтронного пучка из сквозного касательного канала реактора ИВВ-2 и может быть использовано при исследованиях в различных областях физики.

Поступило в Редакцию 9/VII 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Б. Н. Гошицкий и др. «Атомная энергия», 25, 21 (1968).
2. Neve de Mevergnies, E. Legrand. Rapport CEN-BLG, 147 (1962).

О ВОССТАНОВЛЕНИИ КОМПАКТНОЙ U_3O_8 ВОДОРОДОМ

Ю. М. ДЫМКОВ, Н. Г. НАЗАРЕНКО, Г. А. ДЫМКОВА, Е. Ф. ГОРЮНОВ

УДК 536.425:661.879.1

В процессе изучения фазовых переходов в синтетических окислах урана проведены две серии опытов по восстановлению U_3O_8 водородом. Для восстановления были взяты спрессованные из порошка ручным прессом компактные таблетки U_3O_8 , прокаленные на воздухе при $T = 1000^\circ \text{C}$ в течение 2 ч с целью получения кристаллических зерен, пригодных по величине для микроскопического изучения.

Первоначально все таблетки серии прокаливались в токе водорода при 500°C в течение 4 ч. Затем первая таблетка Д-2 вынималась и постепенно охлаждалась для исследования под микроскопом, в то время как другие продолжали прокаливаться, но при более высокой температуре (см. таблицу). Таким образом, общее время нагревания в атмосфере водорода последней таблетки (Д-10) в первом опыте составляло 12,5 ч, во втором опыте (Д-11) — 6,5 ч. Конечным продуктом в каждой серии опытов была двуокись урана.

При исследовании продуктов восстановления U_3O_8 основное внимание уделялось металлографическому изучению изменения структуры агрегата и внутреннего строения зерен. Идентификация фаз под микроскопом проводилась путем сравнения с эталонами в компакт-

ных таблетках. Для рентгеновской диагностики использовались истертые пробы, а также микропробы, заключенные в каучуковые шарики.

Исходная U_3O_8 представляла собой плотный агрегат слабоудлинённых кристаллических зерен (порядка 1—3 мкм), разбитый сетью залеченных трещин на округлые блоки. Блоки сцементированы агрегатом более четко окристаллизованных зерен U_3O_8 , пространство между которыми выполнено сильно анизотропной в поляризованном отраженном свете фазой, имеющей в темном поле буро-желтый цвет («желтая фаза»). К участкам залеченных трещин приурочены относительно крупные (десятые доли миллиметра) иглы U_3O_{8-y} , отличающиеся повышенной устойчивостью по отношению к травлению азотной кислотой. Общая ориентировка игл U_3O_{8-y} в агрегате кристаллических зерен U_3O_8 показывает, что зародыши новой фазы возникали здесь эндотаксиально. Образование фазы U_3O_{8-y} при прокаливании U_3O_8 на воздухе связано с потерей кислорода.

При восстановлении U_3O_8 в токе водорода число бластокристаллов U_3O_{8-y} резко возрастает. В образце отношением $\text{O} : \text{U} = 2,59$ бластокристаллов U_3O_{8-y} .

Фазовый состав продуктов восстановления U_3O_8 в атмосфере водорода

Номер опыта	Номер образца	Отношение O : U	Фазовый состав, по данным рентгенометрического анализа	Параметры, Å			Условия прокаливания в атмосфере водорода		
				a_0	b_0	c_0	температура, °C	время нагрева, ч	
								при данной температуре	общее
	Исходный	2,67	U_3O_8	6,72	3,99	4,14	—	—	—
1	Д-2	2,59	U_3O_{8-y}	6,74	3,96	4,14	500 550 550 600 600 600	4 1 2 1,5 3,5 6,5	4 5 6 7,5 9,5 12,5
	Д-4	2,50	$U_3O_{8-y}; UO_{2+x}$	5,4662					
	Д-6	2,45	$U_3O_{8-y}; UO_{2+x}$	5,4670					
	Д-8	2,39	$U_3O_{8-y}; UO_{2+x}$	5,4660					
	Д-10	2,26	$U_3O_{8-y}; UO_{2+x}$	5,4674					
			2,00	UO_2	5,4698				
2	Д-3	2,50	$U_3O_{8-y}; UO_{2+x}$	5,4662	—	—	550 600 600 600	2 1,2 2,5 4,5	2 3,2 4,5 6,5
	Д-7	2,26	$U_3O_{8-y}; UO_{2+x}$	Не опр.	—	—			
	Д-9	2,07	$U_3O_{8-y}; UO_{2+x}$	5,4680	—	—			
	Д-11	2,00	UO_2	Не опр.	—	—			

больше, чем U_3O_8 . По параметрам решетки фаза U_3O_{8-y} идентична оксиду состава $UO_{2,50}$ и $UO_{2,60}$ [1], но несколько отличается от оксида $U_5O_{13±x}$ [2]: $a_0 = 6,74 \text{ Å}$; $b_0 = 3,96 \text{ Å}$; $c_0 = 4,14 \text{ Å}$.

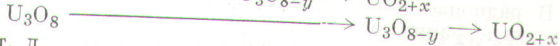
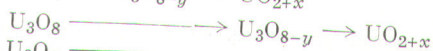
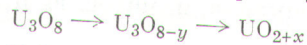
Начиная с состава $UO_{2,59}$ в таблетках появляются скопления кристаллов-псевдоморфов кубической фазы UO_{2+x} по U_3O_{8-y} в виде небольших пятен. По мере повышения температуры и увеличения времени восстановления параметр кубической фазы UO_{2+x} a_0 изменяется от 5,4662 до 5,4698 Å. В доступных для точного измерения участках микротвердость достигает 770 кг/мм². Агрегаты мелких зерен кубической фазы в «темном поле» имеют оранжево-желтый цвет. Среди оранжево-желтых зерен встречаются редкие зерна с красными рефлексамми.

Наряду с полными псевдоморфозами UO_{2+x} по U_3O_{8-y} наблюдаются кристаллы частично восстановленной U_3O_{8-y} . Внутри таких кристаллов вначале появляются тончайшие слои новой фазы, более устойчивой по отношению к травлению азотной кислотой. Слои новой фазы толщиной в сотни микрон ориентированы в призматических кристаллах U_3O_{8-y} параллельно плоскости (001). При более интенсивном развитии новой фазы в призматических кристаллах U_3O_{8-y} появляются редкие тончайшие трещины усадки || (001). Образование тончайших слоев новой фазы || (001) подтверждает представление [3] о механизме восстановления U_3O_8 в результате увеличения плоских сеток из U^{4+} (U^{5+}) за счет сеток U^{6+} .

Кубическая UO_{2+x} образуется в ограниченных участках таблеток U_3O_8 , но развивается исключительно по кристаллам U_3O_{8-y} . В одних таблетках участки локализации UO_{2+x} представлены неправильными пятнами агрегата U_3O_8 и U_3O_{8-y} с включениями разоб- щенных псевдоморфов UO_{2+x} по блострокристаллам U_3O_{8-y} . В других участках возникают сферы относительно равномерногозернистого агрегата (рис. 1), почти сплошь состоящие из псевдоморфов кубической UO_{2+x} по ромбической U_3O_{8-y} , сцементированных местами анизотропной «желтой фазой». Для всех псевдоморфов

характерны грубые трещины усадки || (001) (рис. 2), составляющие, судя по замерам площади микрофотографий весовым методом, 24—25%.

Таким образом, замещению закиси-окиси урана двуокисью в токе водорода при 500—600° С предшествует эндотаксиальное образование зародышей и рост кристаллов новой фазы U_3O_{8-y} ($UO_{2,6}$). Процесс образования промежуточной фазы U_3O_{8-y} в новых участках происходит одновременно с превращением ранее образованной промежуточной фазы в UO_{2+x} :



и т. д.

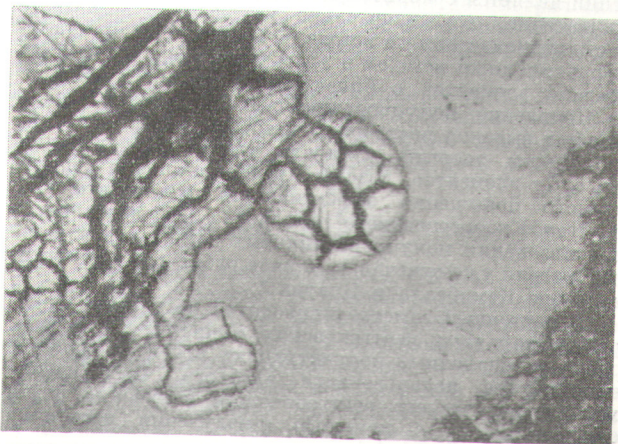


Рис. 1. Сферические трещиноватые агрегаты UO_{2+x} в тонкозернистом агрегате закиси-окиси урана. Микрофотография полированного шлифа ($\times 120$).

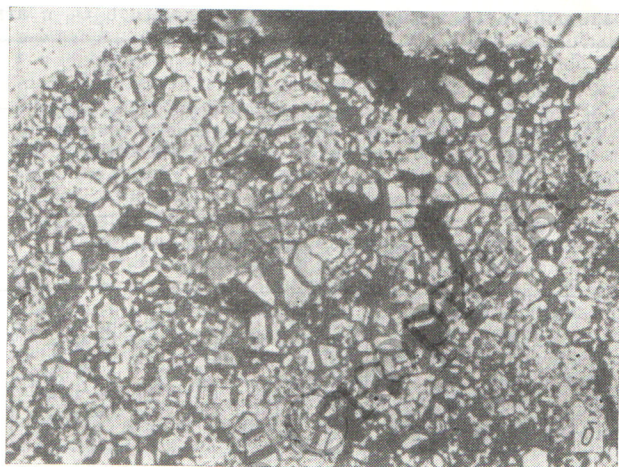


Рис. 2. Скопление кристаллов U_3O_8 - α (светлые) среди тонкозернистого агрегата U_3O_8 - β (черный), протравленного азотной кислотой (а, $\times 1000$), и трещиноватые псевдоморфозы UO_{2+x} по U_3O_8 - β (б; $\times 340$).

При полном переходе в кубическую фазу UO_{2+x} таблетки крошатся, а обломки состоят из пористого тонкозернистого агрегата, текстура которого соответствует текстуре исходной U_3O_8 .

Поступило в Редакцию 4/IV 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. F. Gronvold. J. Inorg. Nucl. Chem., 1, 357 (1955).
2. В. В. Рачев и др. «Докл. АН СССР», 159 1371 (1964).
3. R. Sato. Nature, 188, 222 (1960).

К использованию полупроводниковых детекторов в радиоизотопном рентгенофлуоресцентном методе

А. А. ФЕДОРОВ, А. П. ОЧКУР, В. Н. МИТОВ, Ю. П. ЯНШЕВСКИЙ

УДК 550.835

В радиоизотопном рентгенофлуоресцентном методе для регистрации вторичных рентгеновских спектров используются сцинтилляционные и пропорциональные счетчики. Общим недостатком этих детекторов излучений является сравнительно невысокое энергетическое разрешение, что значительно ухудшает чувствительность радиоизотопного метода по сравнению с кристалл-дифракционным методом и затрудняет раздельное определение элементов с близкими атомными номерами.

Появление полупроводниковых детекторов, обладающих высокой разрешающей способностью, особенно в области энергий, соответствующих K -излучению тяжелых элементов, создает предпосылки для существенного повышения эффективности радиоизотопного рентгенофлуоресцентного анализа. Перспективность использования полупроводниковых детекторов в рентгенометрии уже отмечалась в ряде работ и, в частности, в обзоре Кэмпбелла и Брауна*.

В настоящей заметке приводятся результаты измерения вторичных рентгеновских K -спектров в толстом слое при различных концентрациях ртути. В качестве наполнителя использовался алебастр. Возбуждение характеристического рентгеновского излучения ртути осуществлялось с помощью γ -излучения источника

Se^{75} активностью 10 мкюри. Для регистрации вторичных спектров использовался полупроводниковый германий-литиевый детектор с толщиной чувствительного слоя 3 мм и энергетическим разрешением 4,0 кэв (вместе с аппаратурой) на γ -линии 123 кэв источника Co^{57} . Измерения проводились в условиях коллимированных первичного и вторичного пучков. Диаметр коллимиационных каналов, имеющих форму круговых цилиндров, составлял 8 мм, угол между осями коллиматоров — 100°.

Вторичные спектры, измеренные с помощью амплитудного анализатора АИ-100, приведены на рисунке (а). Для сравнения на рисунке (б) приведены сцинтилляционные рентгеновские спектры, полученные при тех же геометрических условиях измерений со стандартным кристаллом подистого натрия размером 30×10 мм.

Благодаря высокому разрешению детектора в рентгеновском спектре (см. рисунок, а) четко разрешаются K_{α} - и K_{β} -линии характеристического рентгеновского излучения ртути (69 и 81 кэв соответственно), а также однократно рассеянное γ -излучение, соответствующее γ -линиям 136 и 121 кэв источника Se^{75} . На сцинтилляционных спектрах указанные линии практически не разрешены.

Величина отношения сигнал — фон в области энергий, соответствующих характеристическому K_{α} -излучению ртути, при измерениях с полупроводниковым

* W. Campbell, J. Brown. Analyt. Chem., 4, 346R (1968).