

экспозиции выбрано в соответствии с нижним порогом чувствительности фотоматериала, который составляет 10^6 распадов на единицу площади. Обработанные пленки подвергали фотометрированию для получения фотограмм распределения потока по площади пластины. На рис. 2 приведена автордиограмма пластины. Плотность потока весьма резко падает в направлении от центра медного диска. Пренебрежение этим фактором может привести к большим ошибкам при анализе. Однако ошибка эталонирования резко уменьшается при использовании прокладочного эталонирования, причем значение ее достигает минимума в случае совпадения размеров образца и эталона.

Другой общепринятой формой облучения образцов на нейтронном генераторе является использование пневматических устройств доставки образца к источнику и измерительному устройству. При этом, как правило, образцы и эталоны облучаются отдельно, а различного рода нестабильность пучка учитывается введением фактора мониторингирования. Для оценки точности эталонирования в этом случае также применена нейтронная автордиография.

Медный цилиндр, имеющий форму контейнера, в котором облучается образец, в течение 1 ч подвергали воздействию нейтронного потока, и после необходимого высвечивания его поверхности придавали форму плоскости. Полученный таким образом медный лист экспонировали в контакте с рентгеновской пленкой в течение 12 ч. Фотограмма распределения потока по боковой поверхности контейнера приведена на рис. 3. В этом случае активация поверхности образца также происходит неравномерно, что может внести большую ошибку. Для поршкообразных проб или эталонов большее значение имеет равномерность распределения пробы по контейнеру. При неравномерном распределении пробы даже для стандартных однородных поршкообразных проб приведенные значения активностей могут колебаться в больших пределах. Причем, как это следует из фотограммы, с увеличением линейных размеров эти погрешности резко возрастают за счет перераспределения масс. Применяются специальные системы вращения [5] при облучении образцов в поле неомогенного потока нейтронов. Использование подобных систем значительно сглаживает неравномерность потока, но весьма усложняет конструкцию пневмопочты

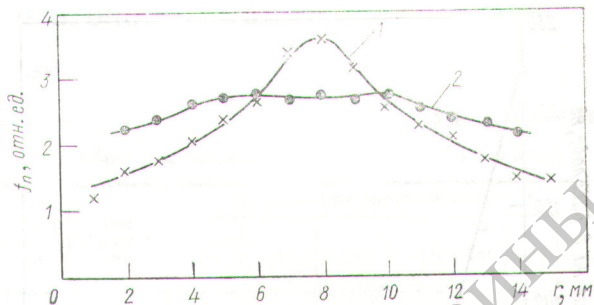


Рис. 3. Фотограмма распределения потока по поверхности контейнера:

1 — непрерывное облучение; 2 — облучение в течение 10 циклов по 5 мин.

для подачи образцов. Кроме того, такая конструкция удаляет образец от мишени, в результате чего падает чувствительность анализа.

Установлено, что облучение в течение нескольких циклов, когда образец многократно проходит в канале пневмопочты, приближается к облучению с применением систем вращения образцов. На рис. 3 приведена фотограмма распределения плотности потока для образца, облученного в течение десяти циклов по 5 мин. Фотограмма на рис. 3 наглядно показывает, как зависит степень сглаживания неравномерности активации от числа циклов.

Поступило в Редакцию 22/II 1974 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Крыженкова Н. А. и др. В сб.: Ядерно-физические методы анализа вещества. М., Атомиздат, 1971, с. 301.
2. Петряк К. А., Бак М. А. ЖТФ, 1955, т. 25, № 4, с. 636.
3. Crauford F. Rev. Scient. Instrum., 1953, v. 24, N 7, p. 552.
4. АгREST М. М., Максимов М. З. ЖТФ, 1958, т. 28, № 6, с. 1345.
5. Барвински А., Гурски Л. и др. Isotopenpraxis, 1968, N 2, S. 52.

Об осаждении двуокиси плутония из фторидных расплавов

ГОРБУНОВ В. Ф., НОВОСЕЛОВ Г. П., УЛАНОВ С. А.

УДК 546.799:541.48-143

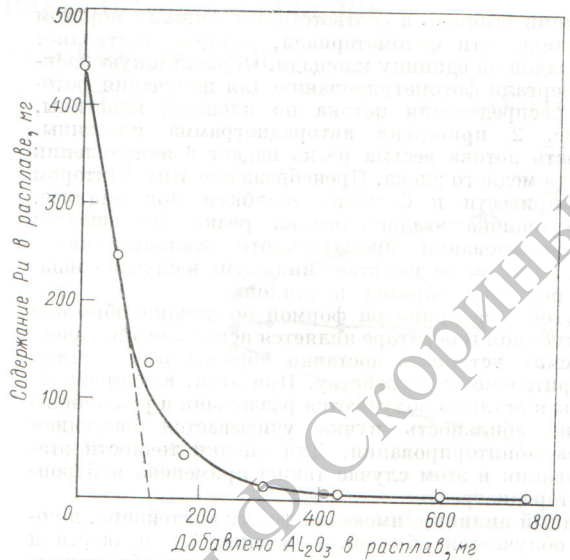
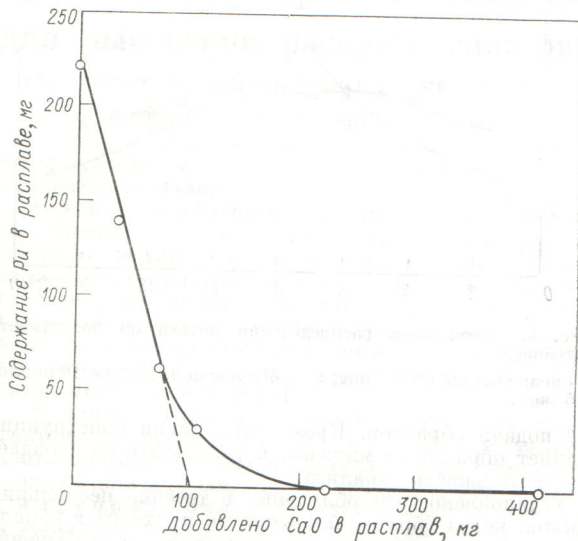
При некоторых процессах переработки ядерного горючего образуются различные композиции фтористых солей, содержащих плутоний [1, 2]. Извлечение плутония из этих солей связано с большими трудностями.

В настоящей работе предпринята попытка разработать пирохимический метод извлечения плутония из смесей фторидов щелочных и щелочноземельных металлов. Метод основан на осаждении двуокиси плутония из фторидного расплава с использованием обменного взаимодействия тетрафторида плутония с оксидами металлов в солевом расплаве.

Известно, что при взаимодействии тетрафторидов урана и тория с оксидами некоторых металлов в среде

фторидных расплавов из расплава осаждаются трудно-растворимые двуокиси урана и тория [3, 4]. Трифторид плутония устойчив в расплавленных смесях фторидов лития, бериллия, циркония и тория в контакте с оксидами бериллия, циркония, тория, однако в присутствии NiO плутоний выделяется в осадок в виде твердого раствора $PuO_2 - ThO_2$ [5].

Нами изучено осаждение двуокиси плутония из расплавов $LiF - NaF - PuF_4$ с помощью окислов кальция и алюминия при температуре $800^\circ C$. Были использованы фториды лития и натрия марки ч. д. а., которые сплавлялись в эвтектическом соотношении. В расплав вводили тетрафторид плутония, полученный гидрофторированием двуокиси плутония. Окислы кальция и алю

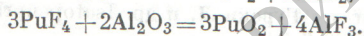
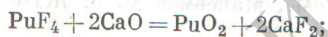


Осаждение плутония из расплава LiF — NaF — PuF₄ окислами кальция и алюминия (исходный вес расплава 60 г).

миния марки ч. д. а. предварительно прокаливали на воздухе при температуре 1000°С в течение 1 ч.

Опыты с расплавами выполняли в перчаточном боксе в атмосфере очищенного аргона в никелевых тиглях. В солевой расплав последовательно вводили взвешенные порции окисей кальция или алюминия; расплав перемешивали в течение 2 ч и после часового отстаивания отбирали пробы расплава никелевой ложечкой. Пробы растворяли в азотной кислоте и радиометрически (по α-излучению) определяли плутоний. Результаты опытов приведены на рисунке.

Прямолинейный участок кривых осаждения плутония окислами кальция и алюминия имеет наклон, соответствующий стехиометрии реакций:



В точке эквивалентности этих реакций концентрация плутония в расплаве, очевидно, определяется растворимостью двуокиси плутония. При добавлении окислителя в избытке относительно стехиометрии указанных реакций, т. е. при увеличении концентрации ионов кислорода в расплаве, концентрация плутония уменьшается в соответствии с требованием постоянства произведения растворимости. При избытке окиси кальция концентрация плутония снижается до величины

менее $5 \cdot 10^{-4}$ вес.%, что позволяет практически полностью выделить плутоний из расплава. В присутствии окиси алюминия концентрация плутония снижается до $4,2 \cdot 10^{-2}$ вес.% и остается постоянной при последующем добавлении окисла. По-видимому, постоянное значение концентрации плутония достигается при концентрации окиси алюминия в расплаве, соответствующей ее растворимости, и указывает на отсутствие сорбции двуокиси плутония на окиси алюминия. Относительно высокая концентрация плутония в присутствии окиси алюминия может быть объяснена тем, что часть ионов кислорода в расплаве связывается в оксифторидные анионы алюминия.

Поступило в Редакцию 28/II 1974 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Новоселов Г. П., Кащеев И. Н., Догаев Ю. Д. «Атомная энергия», 1970, т. 28, вып. 1, с. 49.
2. Katz S., Cathers G., Nucl. Appl., 1968, v. 5, N 1, p. 5.
3. Grimes W. e. a. In: Radioisotopes in the Physical Science and Industry. Vienna, IAEA, 1962, p. 575.
4. Shaffer J. e. a. Nucl. Sci. and Engng, 1964, v. 18, N 2, p. 177.
5. Bamberger C. e. a. J. Inorg. Nucl. Chem., 1971, v. 33, N 3, p. 767.