

Рис. 3. Энергетический спектр быстрых нейтронов реактора ИБР-30:

○ — спектр, восстановленный по реакциям 1—7 МСР;
 — — по данным работы [13]

ет отметить, что в них использовался набор из 14- и 12-пороговых детекторов соответственно.

На рис. 3 представлен спектр быстрых нейтронов реактора ИБР-30 [13]. Сравнение интегральных энер-

гетических плотностей потоков нейтронов в интервалах 1,4—2,8 и 2,8—10 МэВ, по данным настоящей работы и работы [13], обнаруживает хорошее согласие. Детекторы облучались на десятиметровой базе пучка № 6 ИБР-30 при следующем режиме работы реактора: мощность 15 кВт, частота импульсов 5 Гц, замедлитель 40 мм воды.

Авторы благодарят А. К. Уткина и В. П. Гердта за помощь в работе, а Е. А. Крамер-Агеева и В. С. Трошина за полезные обсуждения.

Поступило в Редакцию 29/III 1976 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ломакин С. С., Петров В. И., Самойлов П. С. Радиометрия нейтронов активационным методом. М., Атомиздат, 1975.
2. Лапенас А. А. Измерение спектров нейтронов активационным методом. Рига, «Зинатне», 1975.
3. Тихонов А. Н. «Докл. АН СССР», 1963, т. 151, № 3, с. 501.
4. Турчин В. Ф. «Журн. вычисл. матем. и матем. физики», 1967, т. 7, № 6, с. 1270.
5. Турчин В. Ф. Там же, 1968, т. 8, № 1, с. 230.
6. Турчин В. Ф., Позик В. З. «Изв. АН СССР. Физ. атм. и океана», 1969, № 5, с. 29.
7. Турчин В. Ф. и др. «Успехи физ. наук», 1970, № 102, вып. 3, с. 345.
8. Туровцева Л. С. Препринт ИПМ. М., 1975.
9. Schett A. e.a. Compilation of Threshold Reaction Neutron Cross Sections for Neutron Dosimetry and other Applications. NDCC, Saclay, 1974.
10. Cranberg L. e.a. «Phys. Rev.», 1956, v. 103, p. 662.
11. Болятко В. В. и др. В сб.: Вопросы дозиметрии и защиты от излучений. Вып. 12. М., Атомиздат, 1971, с. 138.
12. McElroy W. e.a. «Nucl. Sci. and Engng», 1972, v. 48, p. 51.
13. Голиков В. В. и др. Сообщение ОИЯИ 3-5736. Дубна, 1971.

УДК 541.135.3

Электрохимическое получение монокристаллов $^{235}\text{UO}_2$

КОРДЮКЕВИЧ В. О., КУЗНЕЦОВ В. И., ОТСТАВНОВ Ю. Д., СМИРНОВ Н. Н.

В НИИЯФ МГУ в последнее время проведены эксперименты по определению времени жизни возбужденных составных ядер, образующихся в реакциях деления $^{238}\text{U} + n$ при энергии нейтронов 1,7—5 МэВ [1, 2]. Мишенью служил монокристалл UO_2 с естественным изотопным составом урана, т. е. определялось время жизни составного ядра ^{239}U , образующегося по реакции $^{238}\text{U}_{92} + ^1_0n$. Для изучения свойств составного ядра ^{238}U необходим монокристалл UO_2 с максимально возможным обогащением по ^{235}U .

Существуют разнообразные методы получения монокристаллов UO_2 : сублимация [3], зонная плавка [4], химические транспортные реакции [5] и другие [6—9]. Одним из наиболее удобных способов получения кристаллической двуокиси является электролиз из хлоридных расплавов, содержащих ионы уранила [10—12]. Способ требует значительных (100—200 г в пересчете на UO_2) исходных количеств урана.

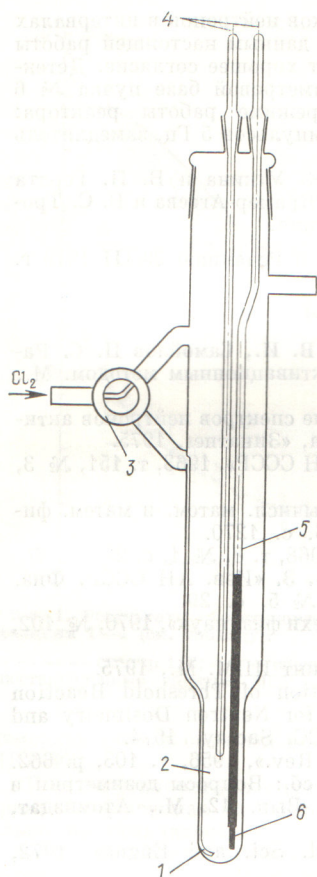
В настоящей работе изучено электрохимическое получение UO_2 из малых количеств ^{235}U (25—40 г в пересчете

на UO_2), т. е. в небольшом объеме расплава — электролита, в условиях, связанных с пространственными трудностями для растущего фронта монокристаллов.

В физическом эксперименте предъявляются следующие требования к качеству кристаллов: максимально возможное совершенство структуры кристалла; отсутствие мозаичности; размер совершенных кристаллографических плоскостей должен быть не менее 3×3 мм.

Монокристаллы UO_2 были получены электролизом на катоде из расплава уранилхлорида (25 мас.%) в $2\text{KCl} - \text{PbCl}_2$ (замена PbCl_2 хлоридами натрия или лития ведет к значительной коррозии электролитной ячейки). Общий объем расплава составлял ~30 см³. Катодом служил торец вставленной в стекло платиновой проволоки диаметром 0,5 мм, анодом — спектрально чистый графит.

Электролитной ячейкой служил специально сконструированный герметичный кварцевый сосуд (рис. 1), позволявший без разгерметизации системы проводить хлорирование порошкообразной UO_2 (исходное сырье



Р и с. 1. Кварцевая электролизная ячейка:

1 — трубка подачи хлора через расплав; 2 — катод; 3 — кран переключения подачи хлора при режиме хлорирования — электролиз; 4 — платиновые токопроводы; 5 — чехол анода (стекло пирекс); 6 — анод

урана) до UO_2Cl_2 и вести электролитическое выделение монокристаллической UO_2 .

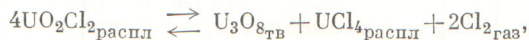
Нагревание ячейки проводилось в электрической печи сопротивления (ТЭП-1), внутри которой помещалась кварцевая емкость с расплавом $LiCl - KCl$, служившим нагревательной средой для электролизной ячейки. Таким приемом достигался равномерный нагрев рабочей поверхности ячейки. Постоянство температуры в течение времени роста монокристаллов обеспечивалось стабилизацией тока, протекающего через нагревательные элементы печи. Колебания температуры не превышали $0,1^\circ C/ч$. Температура измерялась хромель-алюмелевой термопарой, погруженной в кварцевом чехле в расплав $LiCl - KCl$.

Получение уранилхлорида проводилось непосредственно в электролизной ячейке пропуском через расплав при $650^\circ C$ в течение 6—7 ч тока сухого хлора со скоростью 0,5 л/мин. В режиме электролиза поддерживались температура расплава $520^\circ C$ и избыточное давление хлора 500 мм вод. ст., ток хлора (над расплавом) составлял 0,05 л/мин.

При определении оптимального режима электролитического получения монокристаллической UO_2 учитывались следующие условия.

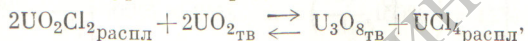
Известно, что фактором, способствующим образованию качественных монокристаллов UO_2 , является проведение электролиза при небольшой плотности тока, высокой температуре расплава и содержании уранил-

хлорида [13]. Однако такие условия электролиза препятствуют получению достаточно крупных монокристаллов, так как при малой плотности тока увеличивается время выделения UO_2 , в результате чего разрушается уранилхлорид по реакции



скорость которой повышается с возрастанием температуры и концентрации уранилхлорида в расплаве.

Также следует учитывать взаимодействие UO_2 с расплавом уранилхлорида:

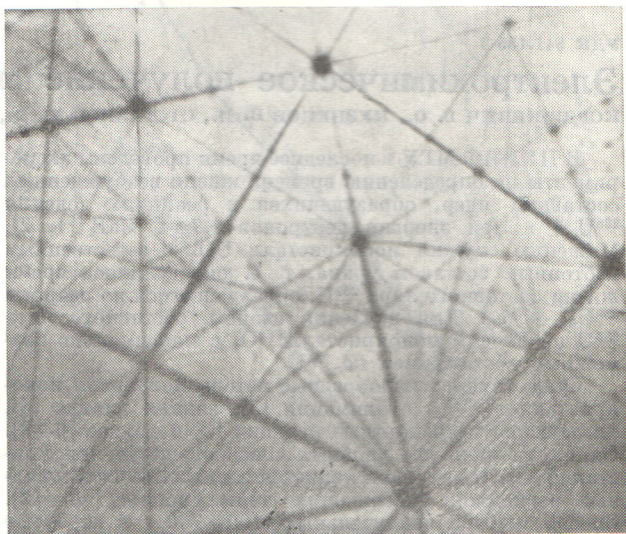


константа которой выше $600^\circ C$ представляет достаточно заметную величину [14].

Предварительные опыты показали, что контроль величины катодного потенциала [15, 16] не обеспечивает гарантированного успеха по получению качественных монокристаллов. Более эффективен электролиз при контролируемой величине тока. Для этого в начальной фазе электролитического выделения UO_2 проводилось запрограммированное по линейному закону повышение тока от 0 до 45—50 мА в течение 7—8 ч, при котором и проводился в течение 45 ч электролиз. Система стабилизации постоянного тока электролиза поддерживала его постоянное значение независимо от изменения в широких пределах сопротивления нагрузки.

Принятый начальный режим электролиза по току ограничивал число зародышей монокристаллов. В процессе электролиза снижалась плотность тока на единицу поверхности растущего фронта монокристаллов, что коррелировало с уменьшением концентрации уранилхлорида в расплаве и что, по-видимому, неизбежно при сравнимом количестве выделяемого на катоде элемента с его содержанием в расплаве.

Выход UO_2 по току в примененном режиме электролиза (5,0 г/(А·ч)) был близок к теоретическому (5,04), что согласуется с данными [16] об осаждении UO_2 на катоде, подобно металлам в результате непосредственного разряда катиона UO_2^{2+} при более положительном



Р и с. 2. Часть друзы монокристаллов UO_2 ($\times 6$)

потенциале, чем идет перезарядка U^{4+} до U^{3+} и разряд их до металла.

При выделении UO_2 , когда убылью элемента в расплаве можно пренебречь, постоянство плотности тока на поверхности растущего фронта кристаллов — одно из важных условий режима электролиза. В этом случае величина тока во времени будет определяться следующим выражением: $I = a^3 b^3 t^2$, где $a = \sqrt[3]{36\pi q^2/d^2}$; q — электрохимический эквивалент UO_2 , г/(А·ч); d — плотность UO_2 , г/см³; b — $B/\sqrt[3]{9}$ (B — заданная плотность тока, А/дм²); t — время электролиза, ч.

На рис. 2 показана фотография части друзы монокристаллов UO_2 , выделяющихся на катоде. Видно, что преимущественный рост монокристаллов происходит по кристаллографическому направлению 100 так, что монокристаллы имеют вид четырехгранной усеченной призмы (боковые стороны — плоскости 111 и верхушка — плоскость 100). Размеры отдельных граней монокристаллов достигают 4×4 мм.

Качество кристаллов и отсутствие мозаичности структуры определялось с помощью протонографии при энергии протонов 600 кэВ (рис. 3). Обработка протонограммы показала, что качество кристаллов полностью отвечает требованиям физического эксперимента.

Поступило в Редакцию 1/IV 1976 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Melikov Yu. e.a. «Nucl. Phys.», 1970, v. A180, p. 241.
2. Воротников П. Е. и др. «Ядерная физика», 1973, т. XVII, с. 904.
3. Lierde W. e.a. «J. Nucl. Mater.», 1962, v. 5, p. 250.
4. Charpan A., Clark W. «J. Amer. Ceram. Soc.», 1965, v. 48, p. 494.
5. Naito K., Kamegashira N., Nomura Y. «J. Crystal Growth», 1971, v. 8, p. 219.
6. Nasu S. «J. Appl. Phys. Japan», 1964, v. 3, p. 664.
7. Shlechter M. «J. Nucl. Mater.», 1968, v. 28, p. 228.
8. Sakurai T., Kamada O., Jshigame M. «J. Crystal Growth», 1968, v. 2, p. 326.

УДК 621.039.733

Осаждение молибдена при упаривании азотнокислых растворов

ЖИРНОВ Ю. П., ЕФРЕМОВ Е. П., ЖИХАРЕВ М. И., ЕФИМОВ А. Н.

Для сокращения объема растворов, подлежащих хранению (или отверждению), высокоактивные водные азотнокислые растворы (рафинаты) от экстракционной переработки облученных твэлов упаривают [1—3]. Известно [4, 5], что при упаривании азотнокислых рафинатов образуются осадки малорастворимых веществ, вследствие чего ограничивается степень упаривания, возможно накипеобразование, увеличение коррозии и забивание (осадками) трубопроводов. В связи с этим представляются актуальными исследования условий образования осадков в процессах упаривания.

В настоящей работе приводятся результаты изучения условий осаждения соединений молибдена.

Предполагают [4, 5], что в процессах упаривания высокоактивных азотнокислых рафинатов молибден выпадает в осадок в виде трехоксида и цезиевой соли фосфорно-молибденовой кислоты. Поскольку состав выпадающих осадков точно неизвестен, данные по растворимости различных гидратов трехоксида молибдена [6—9] не могут пока ввести определенности в оценку



Р и с. 3. Протонограмма монокристалла $^{238}UO_2$ при $E_p = 600$ кэВ

9. Yajima S., Furuya H., Aoki K. «Nihon-Genshiryoku Gakkai Shi», 1968, v. 10, p. 16.
10. Robins R. «J. Nucl. Mater.», 1960, v. 2, p. 189.
11. Robins R. «J. Nucl. Mater.», 1961, v. 3, p. 294.
12. Schott F., Mudge L. «J. Nucl. Mater.», 1963, v. 9, p. 245.
13. Барабашкин А. Н., Калиев К. А. «Атомная энергия», 1968, т. 25, вып. 3, с. 193.
14. Смирнов М. В., Комаров В. Е., Корюшкин А. П. «Атомная энергия», 1967, т. 22, вып. 1, с. 30.
15. Смирнов М. В., Скиба О. В. Труды Института электрохимии УФ АН СССР, 1963, т. 4, с. 3.
16. Смирнов М. В., Скиба О. В. Там же, с. 17.

поведения молибдена в процессах упаривания рафинатов.

Метод исследования в принципе воспроизводит процесс промышленной выпарки. Конструкция выпарного аппарата (из кварцевого стекла) описана ранее [10].

В аппарат заливали 150 мл раствора заданного * состава и нагревали его до кипения (под атмосферным давлением). После появления первых капель конденсата начинали непрерывно подавать питающий раствор. Скорость упаривания 150 ± 10 мл/ч. Питающий раствор содержал молибден известной концентрации (0,5—1,5 г/л) и азотную кислоту с концентрацией, равной концентрации кислоты в равновесных парах над кубовым раствором. Таким образом, в течение опыта заданный состав кубового раствора оставался неизменным (с погрешностью $\pm 10\%$), а концентрация молибдена в нем непрерывно повышалась. Опыт заканчивали в мо-

* Растворы готовились по навеске исходных веществ.