

В заключение авторы выражают благодарность Л. Е. Ниловой за разработку методики химического анализа применительно к исследуемым сплавам.

Поступила в Редакцию 18/VI 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. W. Tolle у. Патент США 2880059 (1959). Цит. по РЖХ, 43286 (1960).
2. Chem. Abstrs., 52, 8281 (1956).
3. R. W. M. D' bue, S. Ferguson. J. Chem. Soc., No. 11, 3401 (1959).
4. М. М. Попов, Ф. А. Костылев, Н. В. Зубова. «Ж. неорг. хим.», 4, 1708 (1959).
5. Л. А. Хрипин, Ю. В. Гагаринский, Л. Я. Лукьянова. «Изв. Сиб. отд. АН СССР. Сер. химич. науки», № 3, 14 (1965).
6. S. Langer, F. Blankenship. J. Inorg. Nucl. Chem., 14, 26 (1960).
7. W. Lachauasen. Acta crystallogr., 2, 388 (1949).
8. E. Levin, C. Robbins, H. McMurdie. Phase Diagrams for Ceramists. The American Ceramic Society, Inc., 1964.
9. Б. Ф. Ормонт. Структуры неорганических веществ. М.—Л., Гостехиздат, 1950.
10. Дж. Кац. Е. Рабинович. Химия урана. М., Изд-во иностр. лит., 1954.

Разделение изотопов бора с использованием изотопного обмена между BF_3 и комплексом BF_3 с фенетолом

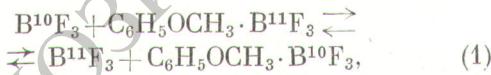
С. Г. КАТАЛЬНИКОВ, Р. М. ПАРАМОНОВ, В. С. НЕДЗВЕЦКИЙ

УДК 621.039.32:621.039.322.3:546.27

Изучена термическая диссоциация комплекса BF_3 с фенетолом в области температур 172—182° С. Показано, что при концентрациях воды не более 0,01—0,02% полнота термической диссоциации достаточна для получения высококонцентрированного B^{10} . Изучено влияние на термическую диссоциацию комплекса добавок фенола, также образующего комплекс с BF_3 .

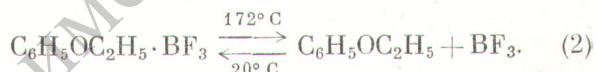
На лабораторной колонке высотой 0,94 м и диаметром 16 мм проведены опыты по разделению изотопов бора. По величине степени разделения в стационарном состоянии рассчитаны величины ВЭТТ для 15, 25 и 35° С. Результаты опытов на лабораторной колонке подтвердили данные по термической диссоциации, полученные на модельной установке.

Существующие промышленные методы разделения изотопов бора характеризуются сравнительно низкими величинами коэффициентов разделения α . Так, при химической ректификации комплекса BF_3 с диметиловым эфиром [1] $\alpha^{100} = 1,016$, а в ходе ректификации жидкого BF_3 $\alpha = 1,008$ [2]. Химический изотопный обмен, осуществляемый по реакции типа



между газообразным BF_3 и жидкими комплексами BF_3 с некоторыми эфирами $[(\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{S}, (\text{C}_4\text{H}_9)_2\text{S}, \text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5, \text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_4\text{H}_6]$ и др. характеризуется значительно большими коэффициентами разделения. Для системы $\text{C}_6\text{H}_5\text{OCH}_3 \cdot \text{BF}_3 - \text{BF}_3$ $\alpha^{25} = 1,035$ [3], а в случае использования комплекса BF_3 с фенетолом $\text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5 \cdot \text{BF}_3$ $\alpha^{25} = 1,042$ [4]. Применение этих эфиров тор- мозится в настоящее время недостаточной изученностью химических свойств комплексов.

Обращение потоков в колоннах химического изотопного обмена осуществляется относительно просто за счет термической диссоциации комплекса по реакции



Реакция обратима и позволяет многократно использовать эфир в процессе разделения, сводя основные затраты на процесс разделения к затратам тепла на диссоциацию комплекса. Настоящая работа посвящена дальнейшему изучению применения системы $\text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5 \cdot \text{BF}_3 - \text{BF}_3$ для разделения изотопов бора в колонне изотопного обмена.

Термическая диссоциация комплекса $\text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5 \cdot \text{BF}_3$

Все установки по разделению изотопов бором химическими методами работают с обращением потоков на обоих концах каскада (рис. 1). При обращении потоков на верхнем — бедном B^{10} — конце каскада происходит поглощение BF_3 фенетолом. Оно протекает в насадочных абсорберах количественно при условии полного отвода теплоты реакции. Неполнота поглощения BF_3 скажется лишь на величине потока комплекса.

Более важным для работы колонны по разделению изотопов является обращение потоков на нижнем — богатом B^{10} — конце колонны в десорбере. Оно совершается по прямой реакции (2). Степень термической диссоциации комплекса, характеризующаяся количеством

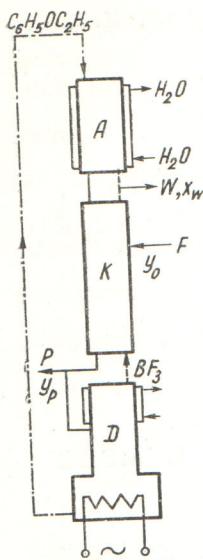


Рис. 1. Принципиальная схема установки для разделения изотопов бора с использованием комплекса $C_6H_5OC_2H_5 \cdot BF_3$:

А — абсорбер; К — колонна изотопного обмена; Д — десорбер; F — питание; Р — продукт; W — отвал.

BF_3 , который остается в отводимом фенетоле, должна быть весьма высокой. В табл. 1 указаны предельные количества BF_3 , соответствующие дополнительному отбору в количестве 1% максимального при концентрации продукта y_P :

$$P_{\max} = \frac{P}{L} \cdot \frac{\epsilon y_0 (1 - y_0)}{y_p - y_0}.$$

Степень термической диссоциации комплекса фенетол — BF_3 зависит от температуры и парциального давления BF_3 над ним.

Для обеспечения необходимой полноты обращения потоков ее проводят обычно при температуре кипения эфира ($172^\circ C$). Весь процесс обращения потоков совершается под давлением BF_3 , превышающем атмосферное на величину гидравлического сопротивления колонки.

Как будет показано далее, в фенетоле всегда присутствует в том или ином количестве фенол, также образующий с BF_3 комплекс. Так как фенол кипит при $181^\circ C$, то термическая диссоциация комплекса BF_3 с фенолом при $172^\circ C$ может быть недостаточно полной. В результате суммарное содержание BF_3 в фенетоле может превысить допустимое. Наконец, в исходных веществах может находиться некоторое количество воды, которая при высоких температурах будет гидролизовать BF_3 с образованием NF , HBF_4 , H_3BO_3 и гидроксификацией торборных кислот HBF_3OH , $HBF_2(OH)_2$.

Таблица 1
Величина максимального и допустимого отбора для различных величин y_P

y_P	P_{\max}	$P_{\text{доп.}}$ моли $BF_3/10^6$ молей фенетола
0,25	0,1198	1200
0,40	0,0321	321
0,50	0,0216	216
0,90	0,00935	93
0,95	0,00873	87
1,00	0,00819	82

$HBF(OH)_3$ [5]. В этих условиях NF может реагировать по реакции



Из сказанного следует, что определение «термическая диссоциация комплекса $C_6H_5OC_2H_5 \times BF_3$ » является условным, отображающим только главный из возможных процессов, происходящих в десорбере.

Так как в реальных условиях все указанные процессы могут идти одновременно, то изучение термической диссоциации целесообразно разбить на стадии, выявляющие роль каждого из процессов: а) термическая диссоциация комплекса с минимальными исходными концентрациями фенола и воды, б) то же с минимальной исходной концентрацией фенола и добавками воды, в) то же с минимальной исходной концентрацией воды и некоторым количеством фенола.

Эксперименты

Подготовку фенетола к опыту проводили так, как описано в работе [4]. Технический фенол перед работой дважды возгоняли и в виде точечных навесок добавляли в фенетол. Концен-

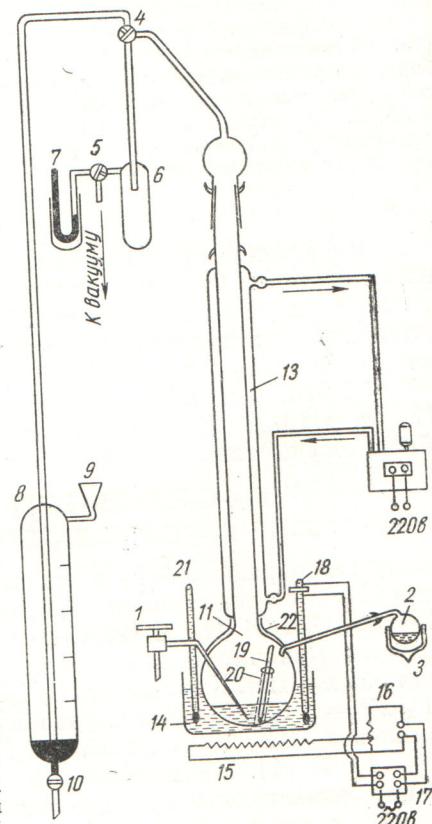


Рис. 2. Схема установки для изучения термической диссоциации комплекса $C_6H_5OC_2H_5 \cdot BF_3$:

1, 4, 5, 10 — краны; 2 — шарик с исходным комплексом; 3 — сосуд Дьюара; 6 — ловушка; 7 — манометр; 8 — маностат; 9 — воронка; 11 — куб; 12 — масляный термостат; 13 — колонка; 14 — масляная баня; 15 — электроплитка; 16 — ЛАТР; 17 — реле; 18 — контактный термометр; 19, 21 — ртутный термометр; 20 — карман; 22 — изоляция.

Результаты опытов
по термической диссоциации
комплекса BF_3 с фенетолом

Таблица 2

Избыточное давление P , мм рт. ст.	Температура в кубе t , °C	Концентрация бора R , моли $\text{BF}_3/10^6$ молей фенетола	Концентрация фенола N , %
Серия опытов «а»: $C_{\text{H}_2\text{O}} = 0,009\%$, $N_0 = 0,004\%$			
50	174,0	59	0,095
100	177,5	48	0,095
150	179,5	36	0,075
200	181,5	48	0,100
Серия опытов «б»: $N_0 = 0,004\%$, $C_{\text{H}_2\text{O}} = 0,022\%$			
50	174,2	59	0,075
100	177,0	36	0,075
150	179,3	48	0,075
200	181,0	36	0,105
Серия опытов «в»: $C_{\text{H}_2\text{O}} = 0,022\%$, $N_0 = 1\%$			
50	174,0	48	1,52
100	176,0	48	1,43
150	178,6	48	1,43
200	181,0	48	1,53

Содержание бора в фенетоле
при исходных $C_{\text{H}_2\text{O}} = 0,057\%$
 $\approx N_0 = 0,004\%$ *

Таблица 3

Время после начала опыта, ч	t , °C	R	N
1	173,5	448	0,19
2	173,5	413	0,18
3	173,0	483	0,20
4	173,0	542	0,20
5	173,5	578	0,20

* Опыты проводили во времени при избыточном давлении 50 мм рт. ст.

трации фенола и бора определяли фотоколориметрическим методом, основываясь на взаимодействии фенола с 4-аминантропирином и бора с кристаллическим фиолетовым [6]. Содержание воды в фенетоле определяли кондуктометрическим титрованием воды реагентом Фишера. Изучение термической диссоциации проводили на модельной стеклянной установке, имитирующей условия в десорбере колонны для разделения изотопов (рис. 2). При каждой температуре отбирали пробу фенетола для определения содержания в нем бора, воды и фенола. Точность определения концентраций бора

составляла 12—25 молей $\text{BF}_3/10^6$ молей фенетола, фенола $\pm 0,01\%$, воды $\pm 0,002\%$.

Результаты измерений представлены в табл. 2 и 3.

Лабораторная установка
для разделения изотопов бора
с использованием комплекса фенетол — BF_3

Нами уже описано использование комплекса BF_3 с фенетолом для разделения изотопов бора в колонне изотопного обмена [7]. Однако в этой работе нам не удалось достичь стационарного состояния по причинам, связанным главным образом с наличием в системе значительных количеств воды. Поэтому были внесены некоторые изменения в конструкцию установки с целью уменьшить возможность попадания в нее воды (рис. 3).

Введен узел образования комплекса (5, 7, 8), исключающий контакт комплекса с воздухом. Смонтирована система передавливания охлажденного фенетола из куба в абсорбер (5, 21, 22) с помощью сухого азота. Для выведения воды, попавшей все же в установку, использован узел осушки циркулирующего фенетола (1, 2, 3), основой которого является колонка 2 (диаметр $d = 35$ мм, высота $z = 150$ мм) с цеолитом NaX . Обменная колонка 10 выполнена из стекла ($d = 16$ мм, $z = 0,94$ м), насадка — круглые спирали Фенске диаметром 2 мм из нержавеющей стали. Абсорбер 6 имел $d = 25$ мм, $z = 0,58$ м и был заполнен трехгранными спиральями Левина размером $3,5 \times 3,5$ мм. Десорбера 14, 15 имел $d = 35$ мм, высота насадочной части $z = 0,55$ м, насадка та же, что в абсорбере (нержавеющая сталь). Колонка, абсорбер и калибранный сосуд для образования исходного комплекса работают при температуре термостата. Часть десорбера 15 подогревается наружным электрообогревом, другая — 14 — охлаждается водопроводной водой, как и емкость 21. В стеклянных кранах применялась смазка Циатим-205. Дифманометр заполнен бензolem. Для работы использовалось 120—130 мл комплекса ($\sim 0,8$ г.экв бора). BF_3 , прошедший через десорбера и колонку, поглощался в абсорбере 6.

Во время работы колонки кипящий фенетол из куба 16 непрерывно отбирали через вентиль 21, откуда периодически передавливали в емкость 1. Контроль за работой установки вели по следующим показателям: поток фенетола в абсорбера, температура термостата, по дававшего воду в абсорбера и обменную колонку

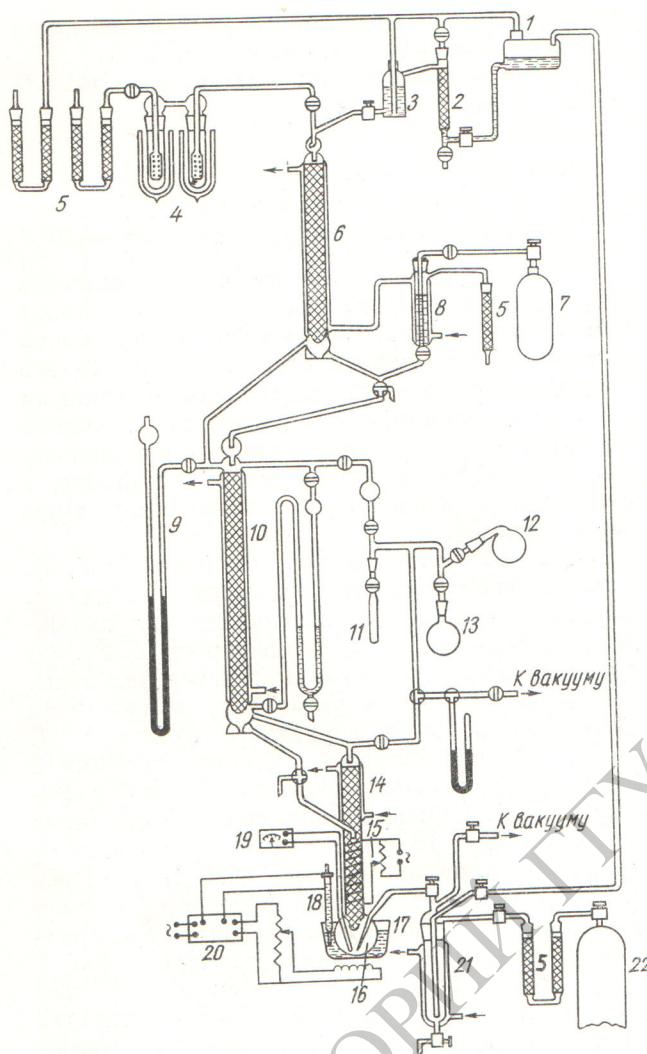


Рис. 3. Схема установки для разделения изотопов бора:
1 — емкость для фенетола; 2 — колонка с цеолитом NaX;
3 — склянка Мариотта; 4 — ловушки; 5 — осушительные колонки;
6 — абсорбер; 7 — баллон с СВГ₈; 8 — сосуд для образования комплекса;
9 — манометр; 10 — колонна изотопного обмена;
11 — ампула для (CH₃)₂В; 12 — шарик для реактива Гриньяра;
13 — пробирка для получения (CH₃)₂В; 14, 15 — охлаждаемая и нагреваемая часть десорбера соответственно; 16 — куб;
17 — масляная баня; 18 — контактный термометр; 19 — термопара и потенциометр ПП; 20 — реле; 21 — сосуд для феномара; 22 — баллон с N₂; ○ — стеклянные краны; □ — металлические вентили.

10, общее давление в установке, перепад давления, температура масляной бани 17, температура в кубе. Через каждые 3—4 ч определяли содержание бора, воды и фенола в фенетоле, концентрацию B¹⁰ на концах колонки.

Исходный фенетол содержал 0,009% воды и 0,004% фенола. В отбираемых пробах содержание воды оставалось на уровне 0,010—

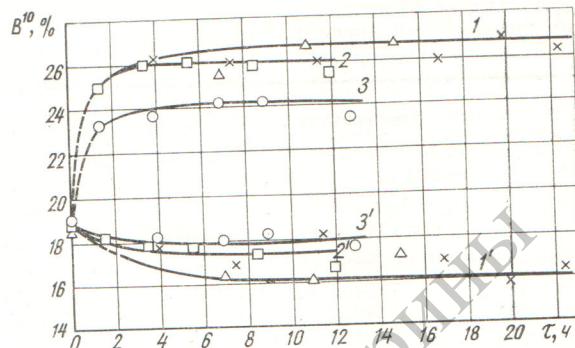


Рис. 4. Кривые накопления B¹⁰ в колонке:

1, 1' — 25° С; 2, 2' — 35° С; 3, 3' — 15° С; Δ — первый опыт; × — второй опыт; ○ — третий опыт; □ — четвертый опыт.

0,013%, концентрация бора в фенетоле — на уровне 48—72 молей бора в 10⁶ молей фенетола. Концентрация фенола за время опыта (25 ч) постепенно нарастала и к концу работы составляла 3—4%.

На описанной установке проведены четыре опыта при температурах 15, 25 (два опыта) и 35° С. Кинетические кривые для всех опытов приведены на рис. 4. В соответствии с предварительным расчетом колонка достигала стационарного состояния за 4—6 ч. Максимальная степень разделения, достигнутая при каждой температуре,

$$K_{\infty} = \frac{y_{\text{низ}}(1-y_{\text{верх}})}{(1-y_{\text{низ}})y_{\text{верх}}} \quad \text{вместе с величиной } \alpha [4]$$

использована для расчета числа теоретических тарелок *n* и величины ВЭТТ (по уравнению Фенске). Условия опытов и их результаты приведены в табл. 4.

Во всех опытах, кроме второго, через некоторое время наблюдалось перераспределение концентраций. Направление изменения концентраций свидетельствовало о перераспределении бора между абсорбериом и десорбериом: бор накапливался в десорбере. К концу работы в верхней части десорбера наблюдалось появление окрашенных солей, которые после проведения качественных анализов оказались тетрафторборатами железа и никеля. Нагреваемая часть десорбера №6 оказалась выщелоченной, особенно в местах соприкосновения с насадкой.

Обсуждение результатов

Термическая диссоциация. Опыты серии «а», проведенные при минимально возможных концентрациях воды и фенола, показывают, что

Результаты опытов на колонке ($d = 16 \text{ мм}$, $z = 0,94 \text{ м}$)

Таблица 4

$t, ^\circ\text{C}$	Плотность орошения, мл комплекса/см ² .ч	α	Состав комплекса, моли $\text{BF}_3/1 \text{ моль C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5$	K_∞	n	ВЭТТ, см
15	102,5	1,044	1,03	$1,43 \pm 0,04$	$8,3 \pm 0,9$	$11,3 \pm 1,3$
25	98,0	1,042	1,00	$1,93 \pm 0,04$	$16,7 \pm 1,1$	$5,6 \pm 0,4$
25	98,0	1,042	1,00	$1,90 \pm 0,03$	$15,6 \pm 0,9$	$6,0 \pm 0,4$
35	94,8	1,038	0,92	$1,70 \pm 0,03$	$14,3 \pm 1,0$	$6,6 \pm 0,5$

термическая диссоциация комплекса при температуре кипения фенетола вполне достаточна для получения B^{10} любой концентрации. Остальное равновесное содержание BF_3 в фенетоле в пределах точности определений не зависит от температуры и по абсолютной величине близко к наблюдавшемуся для термической диссоциации комплекса BF_3 с анизолом [3]. Такие же результаты получены в серии опытов при вдвое большей концентрации воды. Мы предполагаем, что вода, введенная в установку вместе с фенетолом, отгоняется из куба в виде азеотропа с фенетолом ($t_{\text{кип}} = 97,3^\circ\text{C}$, 59,9% H_2O) [8] в холодные части установки. При малых концентрациях воды (0,02% и менее) ее влияние не оказывается, хотя при длительной работе (в колонке) она может привести к гидролизу BF_3 и нарушению работы колонки. В модельной установке такого влияния не наблюдалось. При концентрации воды в исходном фенетоле порядка 0,06% даже при малых концентрациях фенола резко возрастает содержание бора в фенетоле. Использовавшаяся нами методика анализа не позволяет установить, в виде какого соединения бор находится в фенетоле. В присутствии таких больших количеств воды приходится, по-видимому, говорить не о термической диссоциации, а о тех химических реакциях между BF_3 и водой, в результате которых образуются HF , HBF_4 , H_3BO_3 и другие нелетучие гидроксофторборные кислоты. Присутствие HF подтверждается выщелачиванием куба установки (см. рис. 2) и резким возрастанием содержания фенола по сравнению с исходным. В опытах с $C_{\text{H}_2\text{O}} = 0,057\%$ в холодных частях установки конденсировался белый твердый продукт, по-видимому, оксифторид бора $(\text{BOF})_3$, который может образоваться из $\text{BF}_3 + \text{H}_3\text{BO}_3$ по реакции



Эта реакция вместе с реакциями гидролиза BF_3 может регенерировать воду. Учитывая сказанное, нельзя на основании проделанных

опытов назвать максимально допустимую концентрацию воды в фенетоле, хотя очевидно, что она не должна превышать 0,01—0,02%.

Даже при $C_{\text{H}_2\text{O}} = 0,022\%$ концентрация фенола 1% обеспечивает приемлемую равновесную концентрацию BF_3 в фенетоле.

Работа лабораторной колонки. По результатам работы колонки в стационарном состоянии можно сделать некоторые выводы. Из-за малой величины периода накопления мы не могли проверить расчетным путем величину α , используя кинетические кривые. Поэтому обработка результатов свелась в основном к определению величины ВЭТТ (см. табл. 4). Оказалось, что использованные плотности орошения одинаковы и не влияют на величину ВЭТТ. При 15°C большая величина ВЭТТ объясняется уменьшением скорости обмена за счет температуры и увеличением вязкости комплекса. При 35°C на скорость массообмена может влиять снижение концентрации BF_3 в жидкой фазе. Температура 25°C , по-видимому, является оптимальной при данных условиях.

Величина ВЭТТ для системы $\text{BF}_3 - \text{C}_6\text{H}_5\text{OCH}_3 \cdot \text{BF}_3$ в условиях, близких к исследованным нами, равна 4,3—4,5 см [9]. Это означает, что изотопный обмен в системе $\text{BF}_3 - \text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5 \cdot \text{BF}_3$ может протекать медленнее, чем в системе $\text{BF}_3 - \text{C}_6\text{H}_5\text{OCH}_3 \cdot \text{BF}_3$. Подобные факты уменьшения скорости изотопного обмена в результате замены CH_3 -группы на C_2H_5 -группу описаны в литературе [10]. Предполагая наличие в комплексе свободного BF_3 , не являющегося результатом диссоциации комплекса, и рассматривая обмен между свободным и связанным в комплексе BF_3 , авторы работы [11] указывают на следующее соотношение между энергией активации E реакции обмена BF_3 в жидкой фазе и теплотой образования $\Delta H_{\text{обр}}$ комплекса из BF_3 и эфира: чем больше $\Delta H_{\text{обр}}$, тем меньше E , и наоборот. Для эфиратов $\text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_3 \cdot \text{BF}_3$ и $\text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5 \cdot \text{BF}_3$ величины $\Delta H_{\text{обр}}$ равны соответственно 12,2 и 11,7 ккал/моль [3, 4]. Следовательно, обмен

между свободным и связанным в комплексе BF_3 в эфирате $\text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5 \cdot \text{BF}_3$ идет медленнее. Если скорость фазового обмена одинакова для обеих систем, то скорость изотопного обмена в системе $\text{BF}_3 - \text{C}_6\text{H}_5\text{OC}_2\text{H}_5 \cdot \text{BF}_3$ будет меньше, чем у аналогичного комплекса с анизолом.

Степень термической диссоциации комплекса, достигнутая в опытах на колонке, подтверждает данные, полученные на модельной установке. Практически во всех случаях содержание BF_3 в фенетоле оставалось на уровне 50—70 молей BF_3 на 10^6 молей фенетола. Такая полнота обращения потоков на богатом B^{10} конце колонки обеспечивает возможность получения продукта с любым содержанием B^{10} . В опытах на колонке было показано, что возрастание концентрации фенола в фенетоле до 3—4% сказывается на полноте термической диссоциации комплекса. Обращение потоков на другом конце колонки протекало очень хорошо.

Несмотря на принятые нами меры по уменьшению количества воды в установках, в них протекали химические процессы, связанные с наличием в установках малых количеств воды. Свидетельством этого является возрастание концентрации фенола в фенетоле как в опытах по термической диссоциации, так и при работе на колонке. По нашим расчетам, ввилось с фенетолом (в опытах на колонке, $\sim 0,1$ г воды) BF_3 можно считать достаточно сухим. По окончании опытов фенетол содержал 5,5—7 г H_2O . Мы считаем, что в установке идут процессы, сопровождающиеся регенерацией воды. Кратность регенерации составляет 55—70 при кратности циркуляции фенетола 2—3.

Это справедливо в случае, если в установке не протекают другие химические процессы, приводящие к образованию фенолов. Неницеску [12] указывает, однако, что алкилариловые эфиры в присутствии сильных электрофильных агентов способны к внутримолекулярным перегруппировкам с образованием орто- и пара-алкилфенолов.

В заключение авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность акад. Г. К. Борескову за ряд ценных указаний и помочь в работе.

Поступила в Редакцию 23/V 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. A. Conn, J. Wolf., Ind. Eng. Chem., 50, 1231 (1958).
2. Н. Н. Севрюгова, О. В. Уваров, Н. М. Жаворонков. «Ж. физ. химии», 24, 1040 (1960).
3. А. Ралко, R. Healy, L. Landau. J. Chem. Phys., 28, 214 (1958).
4. С. Г. Катальников, Р. М. Паррамонов. «Ж. физ. химии», 40, 301 (1966).
5. C. Wamser. J. Amer. Chem. Soc., 73, 409 (1951).
6. И. А. Блюм и др. «Заводск. лаборатория», 27, 644 (1961).
7. С. Г. Катальников, Р. М. Паррамонов, И. А. Капустин. «Атомная энергия», 20, 345 (1966).
8. А. Вайсбергер и др. Органические растворители. М., Изд-во иностр. лит., 1958.
9. А. Ралко. Ind. Eng. Chem., 51, 121 (1959).
10. А. Polaczek, A. Halpern. Nucleonics, 8, 667 (1963).
11. S. Brownstein, A. Eastham, G. Latremouille. J. Phys. Chem., 67, 1028 (1962).
12. К. Д. Неницеску. Органическая химия. Т. 1. М., Изд-во иностр. лит., 1963, стр. 494.

Радиоактивные выпадения в Вильнюсе в 1962 и 1964 гг.

Ч. А. ГАРБАЛЯУСКАС, Л. И. ГЕДЕОНОВ, Б. И. СТЫРО, Г. В. ЯКОВЛЕВА

УДК 551.577.7

Приведены данные о содержании Ce^{141} , Ce^{144} , Zr^{95} , Cs^{137} и Sr^{90} в радиоактивных выпадениях в Вильнюсе в 1962—1965 гг. Рассмотрены вопросы вторичного радиоактивирования этих продуктов деления в радиофракционировании этих продуктов деления в радиоактивных выпадениях, их накопление на почве. Кроме того, предпринята попытка установить корреляцию между величиной выпадений и некоторыми метеорологическими факторами.

Радиоактивные продукты, выпадавшие из атмосферы, собирались ежемесячно в баки общей площадью $0,5 \text{ m}^2$. После выпаривания и озоления содержимое баков анализировали

при помощи сцинтилляционного спектрометра γ -излучения. Из результатов, представленных на рис. 1, 2, видно, что в апреле 1962 г. интенсивность радиоактивных выпадений резко увеличилась и продолжала расти в последующие месяцы. Низкая тропопауза, наблюдавшаяся в это время над Западной Европой, и увеличение повторяемости прохождения холодных фронтов через территорию Литовской ССР объясняют появление максимума интенсивности выпадений за счет циркуляционных процессов в атмосфере. При резком подъеме тропопаузы в мае — июне 1962 г. часть стрatosферного