

на рисунках ошибка является среднеквадратичной, полученной в результате усреднения, и не включает неопределенность констант экспериментальной установки ϵ_{γ} , $\epsilon_{\text{гс}}$ и C , характеризующих тем самым неопределенность в относительном энергетическом ходе величины α . Полная абсолютная ошибка величины α , включающая неопределенность всех величин выражения (1), составляет 10–15%. На рисунках приведено также большинство имеющихся в настоящее время экспериментальных данных о величине α в области энергий нейтронов 10 кэв — 1 Мэв.

Можно отметить хорошее согласие всех экспериментальных данных по Pu^{239} , полученных на ускорителях Ван де Граафа аналогичным методом. Для U^{235} наши данные в области энергий нейтронов 20–100 кэв лежат систематически ниже на ~15% результатов работ [1–3]. Однако необходимо отметить, что в этих работах использовались значительно более толстые образцы (в ~6 раз), и для детального сравнения, по-видимому, требуется учитывать различные эффекты резонансной блокировки. Обращает на себя внимание заметная структура в полученной нами зависимости величины α от энергии нейтронов как для U^{235} , так и для Pu^{239} . Эта структура может быть причиной значительных расхождений в случае U^{235} в результатах измерений η методом пропускания в сферической геометрии на фото-нейтронных источниках $\text{Sb} - \text{Be}$ [5–7]. Наличие такой структуры в величине α не является неожиданным и может быть связано с сильной структурой в сечении деления, которая для U^{235} в этой области энергий нейтронов недавно была обнаружена [8].

В заключение авторы выражают благодарность А. И. Лейпунскому, Л. Н. Усачеву, А. И. Абрамову, В. А. Романову за постоянное внимание и содействие при выполнении настоящей работы, а также В. С. Шо-

рину, М. В. Боховко, Н. С. Косулину, В. И. Володину, В. Н. Канаки за участие в подготовке и проведении экспериментов.

Поступило в Редакцию 29/IV 1971 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Hopkins, B. Diven. Nucl. Sci. Engng. 12, 169 (1962).
2. L. Weston, G. de-Saussure, R. Gwin. Nucl. Sci. Engng. 20, 80 (1964).
3. G. de Saussure et al. Nucl. Data for Reactors. Vol. II, Vienna, IAEA, 1967, p. 233.
4. В. Н. Кононов и др. «Приборы и техника эксперимента», № 6, 51 (1969).
5. П. Е. Спивак и др. «Атомная энергия», № 3, 21 (1956).
6. В. Н. Андреев. Там же, 4, 185 (1958).
7. А. А. Ваньков, Ю. Я. Ставиский. Там же, 19, 41 (1965).
8. B. Patrick et al. AERE-R 6350, 1970.
9. Y. Czirr, J. Lindsey. Nucl. Data for Reactors. Vol. I, Vienna, IAEA, 1970, p. 331.
10. Ван-Ши-Ди и др. Phys. and Chem. Fission. Vol. I, Vienna, IAEA, 1965, p. 287.
11. R. Gwin et al. Nucl. Sci. Engng. 40, 306 (1970).
12. M. Schomberg et al. Nucl. Data for Reactors. Vol. I, Vienna, IAEA, 1970, p. 315.
13. В. Н. Кононов и др. Препринт Р-3-5112, Дубна, 1970.
14. Ю. В. Рябов и др. Препринт Р-3-5113, Дубна, 1970.

Кокильный метод битумирования природных сорбентов, поглотивших Ir^{192} *

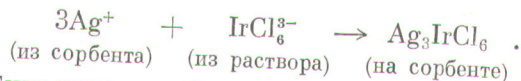
Х. ДАИЕВ, Г. ДЕЛЧЕВ, Г. ГРАДЕВ, С. СИМОВ, В. ЖЕЛЯЗКОВ
(Физический институт Болгарской академии наук, София)

УДК 546.93

В работах [1–3] описан кокильный метод битумирования изотопов Cs^{137} , $\text{Ag}^{110\text{m}}$, Tl^{204} , Sr^{90} и Ca^{45} , задержанных на природных сорбентах (неолите с клиноптилолитом и вермикулите). Настоящая работа посвящена изучению сорбции Ir^{192} некоторыми природными сорбентами и их битумированию путем разработанного нами метода.

В отличие от перечисленных выше элементов ионы иридия в водных растворах склонны к образованию различных комплексов [4,5], что усложняет процессы их сорбции. Имеются данные о сорбции иридия только на синтетических смолах [6], но не на природных сорбентах. По-видимому, сложное соотношение между различными формами иридия затрудняет его сорбцию на определенном катионите или анионите. С другой стороны, в литературе [4, 7] описаны малорастворимые соединения иридия с серебром, ртутью, свинцом, таллием и т. д. типа M_3IrAg_6 , где М — серебро, ртуть, свинец или таллий, а IrAg_6 — комплексы иридия, включающие

в качестве А — Cl^- , OH^- , NO_2^- и пр. Сорбенты указанного типа обладают большой сорбционной емкостью в отношении серебра, ртути, свинца и таллия. В связи с этим мы исследовали создание условий сорбции иридия путем реакций осаждения, т. е. приводили соответствующую пробу сорбента в серебряную, ртутную, свинцовую или таллиевую формы, подходящие для реакций осаждения, и пропускали через нее раствор иридия. Например, для серебряной формы сорбента реакция этого типа может быть изображена в следующем виде:



Были изучены сорбции Ir^{192} на природных сорбентах (неолите и вермикулите) и битумирование сорбентов, задержавших указанный изотоп.

Химический состав сорбентов, использованных в естественном состоянии, приведен в табл. 1; крупность зерен соответствует классу (–3,0; +0,3 мм). Начальный раствор, содержащий иридий в виде хлороиридата аммония $(\text{NH}_4)_3\text{IrCl}_6$, имел удельную активность 2040 имп/мин·мл. Определенный объем

* Исследования проведены в рамках контракта, заключенного с МАГАТЭ в Вене.

Химический состав сорбентов (%)

Таблица 1

Сорбент	SiO ₂	Fe ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂	SO ₃	P ₂ O ₅
Цеолит с клиноптилолитом	65,90	0,45	12,97	2,30	0,43	2,12	4,93	0,08	—	—
Вермикулит	41,92	5,46	5,41	4,03	23,84	0,61	0,28	0,82	5,93	1,31

раствора, pH которого регулировали буферами, пропускали через пробу сорбента с заданной скоростью. Измеряли удельную активность начального и прошедшего растворов и вычисляли коэффициент сорбции иридия. Результаты, приведенные на рис. 1, выявили

Результаты опытов на сорбентах с предварительно сорбированными катионами

Таблица 2

Катион	Цеолит с клиноптилолитом			Вермикулит		
	Удельная активность, $\mu\text{мг/мин} \cdot \text{мл}$		Коэффициент сорбции, %	Удельная активность, $\mu\text{мг/мин} \cdot \text{мл}$		Коэффициент сорбции, %
	Начальный раствор	Прошедший раствор		Начальный раствор	Прошедший раствор	
Серебро	2040	202	90,1	2040	118	94,2
Ртуть	2040	135	93,4	2040	33	98,4
Свинец	2040	235	88,5	2040	299	85,3
Таллий	2040	1032	49,4	2040	857	58,0

сложную зависимость сорбции иридия от pH и возможность задерживания иридия указанными сорбентами примерно до 50%.

В опытах с сорбентами, предварительно превращенными в серебряную, ртутную, свинцовую и таллиевую

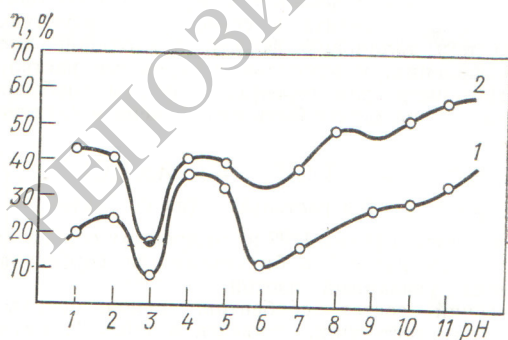


Рис. 1. Зависимость коэффициента η сорбции Ir^{192} от величины pH:

1 — для цеолита; 2 — для вермикулита.

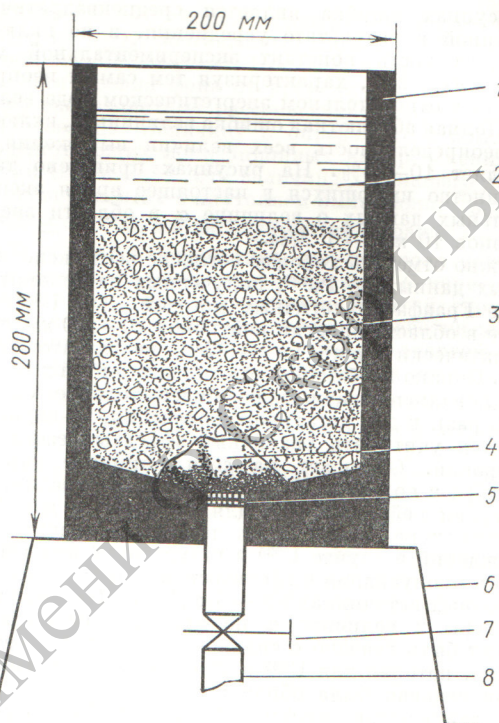


Рис. 2. Схема битумного блока:

1 — битумная чаша; 2 — радиоактивный раствор Ir^{192} ; 3 — сорбент, обработанный нитратом серебра; 4 — стекловата; 5 — металлическая сетка; 6 — стойка; 7 — регулирующий кран; 8 — выпускная труба.

формы, через пробу пропускали раствор серебра, ртути, свинца или таллия в виде нитрата. После промывки дистиллированной водой до ее отрицательной реакции для соответствующего иона через сорбент пропускали раствор, содержащий иридий. Результаты (табл. 2) свидетельствуют о возможности сорбции Ir^{192} природными сорбентами до 98—99% при предварительной сорбции серебра, ртути или свинца.

Битумирование сорбентов, задержавших Ir^{192} , производилось согласно разработанному нами методу [1]. Для изготовления битумной чаши, которая отливалась в специальном металлическом кокиле, использовали аккумуляторный битум. В чашу (рис. 2) укладывали два пласта сорбента: нижний — из цеолита, верхний — из вермикулита. Через сорбенты пропускали раствор нитрата серебра, а после промывки дистиллированной водой — раствор Ir^{192} суммарной активностью 10^{-3} кюри при скорости вытекания $15-20 \text{ мл/мин}$. После этого активность раствора Ir^{192} не отличалась от природной, обусловленной радиоактивными выпадениями.

Сорбенты промывали дистиллированной водой (в промывочных водах не было обнаружено наличия серебра и иридия) и после воздушной подсушки чашу закупоривали расплавленным битумом.

Битумный блок с сорбентом, «нагруженным» радиоактивным изотопом, хранили под открытым небом. Ежемесячно производили контрольное измерение радиоактивности вод (дождь или снег), обмывших блок,

Удельная активность природных вод и вод, омывающих битумный блок

Таблица 3

Анализируемая вода	Удельная радиоактивность, нкюри/л					
	1970 г.			1971 г.		
	Ок-тябрь	Но-ябрь	Де-кабрь	Ян-варь	Фев-раль	Март
Вода, омывающая битумный блок с вмурованным Ir^{192}	0,045	0,012	0,025	0,018	0,028	0,170
Радиоактивные выпадения	0,044	0,013	0,020	0,017	0,021	0,170

а также вели визуальное наблюдение за состоянием поверхности блока *. Результаты, приведенные в табл. 3, показывают, что вымываемая радиоактивность — порядка величины, обусловленной атмосферными выпадениями.

* Способ хранения и результаты контрольных наблюдений за состоянием битумного блока и радиоактивностью собранных атмосферных осадков, омывающих блок, подробно описаны в работе [1].

Проведенными исследованиями сорбции Ir^{192} на природных сорбентах (цеолите с клиноптилолитом и вермикулите) установлено благоприятное воздействие предварительно сорбированных катионов: серебра, ртути или свинца — на сорбцию иридия вследствие образования осаждаемых соединений на сорбентах. Сорбенты, задержавшие Ir^{192} , были забитумированы по кокильному методу.

Предлагаемый метод расширяет область применения кокильного метода для переработки жидких радиоактивных отходов средней и низкой удельной активности.

Поступило в Редакцию 20/V 1971 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Х. Даниев и др. In «Management of low-and intermediate-level radioactive wastes», Vienna, IAEA, 1970, p. 739.
2. Х. Даниев и др. «Изв. Института физики с АНЭБ Болг. АН», т. XXII, 1971.
3. Х. Даниев и др. Там же (в печати).
4. A. W e r n e r, O. V z i e s. Ann. Chemie, 364, 87 (1909).
5. Ф. Б и м и ш. Аналитическая химия благородных металлов. Часть 1. М., «Мир», 1969.
6. О. С а м у э л с о н. Ионообменные разделения в аналитической химии. М., «Химия», 1966, стр. 347.
7. M. D e l e p i n e. Comp. Rend., 149, 1073 (1909).

УВАЖАЕМЫЕ ЧИТАТЕЛИ!

Если Вы хотите приобрести отдельные номера журнала «Атомная энергия», извещайте нас об этом за 1,5—2 месяца до выхода интересующего Вас номера в свет (в ноябре заказывайте январский выпуск, в декабре — февральский и т. д.). Заявки шлите по адресу: Москва, Центр, ул. Кирова, 18, редакция журнала «Атомная энергия».

Редакция