

Étude de la migration de radioéléments dans un tube à gradient de température*

J. MÉRINIS, G. BOUSSIÈRES

*Institut de Physique Nucléaire,
Orsay*

Pour étudier le mécanisme de la migration d'un composé chimique dans un tube de quartz parcouru par un gaz vecteur, on a construit un appareil constitué d'un tube métallique dont l'une des extrémités est chauffée entre 600 °C et 1200 °C et l'autre maintenue à 60 °C. On a établi la loi de migration d'un radioélément qui est de la forme:

$$t = K e^{Q/RT_m},$$

où t est le temps de migration, T_m est la température absolue de la zone correspondant à la position au temps t du maximum de dépôt, Q est la chaleur d'adsorption molaire sur le quartz du composé étudié R est la constante des gaz, K est une constante. Cette méthode a été appliquée à la séparation et à la purification de radioéléments.

A l'aide de radioéléments, nous avons étudié le mécanisme de la migration d'un composé chimique dans un tube de quartz parcouru par un gaz vecteur et le long duquel est établi un gradient de température [1]. L'appareil généralement employé (fig. 1) est constitué d'un tube métallique de 90 centimètres de longueur et de 1 cm d'épaisseur, calorifugé extérieurement, dont l'une des extrémités est chauffée par un four électrique et l'autre maintenue à 60 °C par

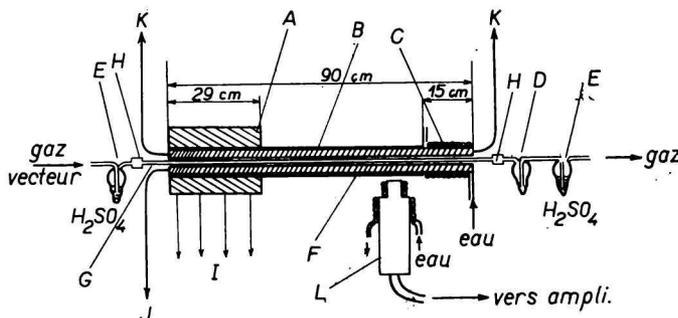


Fig. 1. Dispositif expérimental.

A. four électrique; B. calorifuge; C. serpentin de cuivre; D. flacon de garde; E. flacons laveurs étalonnés; F. tube de cuivre; G. tube de quartz; H. liaisons par tube plastique; I. alimentation électrique du four; J. thermocouple de régulation de la température; K. thermocouple de contrôle de la température; L. sonde à scintillation γ .

* Rapporté dans la Conférence de radiochimie, tenu à Bratislava, ČSSR, du 6 au 10 septembre 1966.

un courant d'eau. Dans la gaine métallique, on place un tube de quartz de 0,2 centimètre de diamètre intérieur et 0,4 centimètre de diamètre extérieur. Les radioéléments, introduits dans la zone la plus chaude du tube sont attaqués par le gaz vecteur, chlore sec chargé de vapeurs de tétrachlorure de carbone par exemple, dont le débit est maintenu inférieur à 100 mm³ par seconde. Le déplacement d'un radioisotope émetteur γ est suivi à l'aide d'une sonde à scintillations mobile le long de l'appareil. En fin d'expérience les radioéléments peuvent être récupérés par lavage des portions de tube actives avec un acide approprié.

Résultats

D'une façon générale, le déplacement dans le tube d'un composé s'effectue suivant un mécanisme différent selon qu'il est présent en quantité pondérable ou à l'échelle des indicateurs. Si le composé sublimé est en quantité pondérable, il est entraîné par le gaz vecteur et commence à se déposer dans la zone du tube dont la température correspond approximativement à sa température de condensation; le dépôt s'étale vers les zones plus froides d'autant plus loin que la durée de l'expérience est plus longue. A l'échelle des indicateurs, la migration est conditionnée par une suite d'adsorptions et de désorptions. Dans ce cas le radioélément volatilisé au point chaud, se déplace avec une vitesse qui décroît progressivement jusqu'à devenir négligeable dans une zone déterminée du tube où le radioélément se rassemble.

Nous avons établi théoriquement et vérifié expérimentalement la loi de migration d'un radioélément à l'échelle des indicateurs. Elle est de la forme:

$$t = K e^{Q/RT_m},$$

ou t est le temps de migration,

T_m est la température absolue de la zone correspondant à la position au temps t du maximum du dépôt,

Q est la chaleur d'adsorption molaire sur le quartz du composé étudié,

R est la constante des gaz,

K est une constante.

Mais le mode de transfert de la matière n'est pas toujours aussi simple et peut différer suivant la vitesse de volatilisation du radioélément au point chaud, qu'il est possible de faire varier en modifiant la température du four.

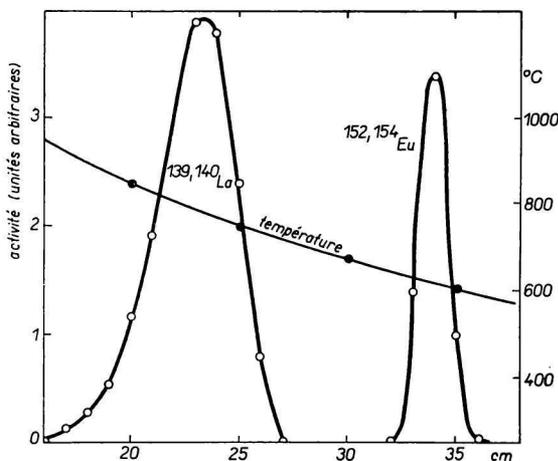
Si cette vitesse est faible, on peut noter d'abord dans une première portion du tube la formation d'un dépôt qui migre lentement suivant la loi exprimée plus haut jusqu'à une position limite définie par la température T_1 . Mais ce dépôt est instable et disparaît plus ou moins vite; on observe alors dans une deuxième portion du tube, l'apparition d'un nouveau pic d'activité qui atteint une zone de stabilisation correspondant à une température T_2 , inférieure à T_1 . La disparition du premier dépôt est d'autant plus rapide que la vitesse initiale de volatilisation est plus grande et si elle est suffisamment élevée, le dépôt intermédiaire n'a pas lieu. Dans certaines conditions la présence des deux dépôts peut être simultanée.

La formation de ces deux dépôts peut s'expliquer en admettant deux processus d'adsorption différant par leur énergie d'activation. L'instabilité du dépôt intermédiaire pourrait correspondre à une diminution de la chaleur d'adsorption avec le recouvrement

de la surface adsorbante, ce qui s'observe lorsque l'adsorption est régie par une isotherme du type Freundlich ou du type Temkin. La formation du dépôt final stable s'interpréterait par un processus de chimisorption obéissant à une isotherme du type Langmuir car dans ce cas la chaleur d'adsorption correspondante serait peu dépendante du recouvrement de surface.

Applications

Cette méthode a été appliquée à la séparation et à la purification de divers radioéléments. Nous avons par exemple isolé l'astate formé par irradiation du thorium par des protons de 155 MeV. De même, les radioisotopes de mercure, de platine, d'iridium, d'osmium et de rhénium produits par spallation dans l'or ont été séparés sans entraîneurs [2]. Le protactinium 233 a été extrait de l'oxyde de thorium irradié aux neutrons, avec un rendement élevé. Des séparations ou des enrichissements ont pu être réalisés sur certains couples de lanthanides; par exemple des traces d'euporium ont été séparées d'une centaine de



microgrammes de lanthane (fig. 2). Nous avons par ailleurs préparé diverses sources d'uranium X 1 et d'uranium Z très pures qui ont servi pour des études de spectrométrie β [3, 4].

Fig. 2. Séparation La—Eu.

ŠTÚDIUM MIGRÁCIE RÁDIOAKTÍVNYCH PRVKOV V TRUBICI S TEPLTNÝM GRADIENTOM

J. Mérinis, G. Bouissières

Ústav nukleárnej fyziky,
Orsay

Študoval sa mechanizmus migrácie chemických látok v kremenej trubici, naplnenej plynom a uloženej v kovovej trubici. Jeden koniec trubice sa zahrieval a druhý ochladzoval na 60 °C. Zistila sa nasledujúca závislosť pre migráciu rádioaktívnych prvkov:

$$t = K e^{Q/RT_m},$$

kde t je doba trvania migrácie, T_m je absolútna teplota zóny s maximálnou usadeninou, Q je teplo molárnej adsorpcie sublimovanej látky na kremeni, R je plynová konštanta, K je konštanta. Táto metóda sa použila na oddeľovanie a čistenie niektorých rádioaktívnych prvkov.

ИЗУЧЕНИЕ МИГРАЦИИ РАДИОАКТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ТРУБКЕ С ТЕМПЕРАТУРНЫМ ГРАДИЕНТОМ

Й. Мерини, Г. Буисьер

Институт ядерной физики,
Орсей

Изучался механизм миграции химических веществ в кварцевой трубке, наполненной газом и находящейся в металлической трубке. Один конец трубки нагревался, а второй охлаждался на 60° . Была найдена следующая зависимость для миграции радиоактивных элементов:

$$t = K e^{Q/RT_m},$$

где t — время миграции, T_m — абсолютная температура зоны с максимальным осаждением, Q — теплота молярной адсорбции сублимированного вещества на кварце, R — газовая постоянная, K — константа. Этот метод был применен для разделения и очистки некоторых радиоактивных элементов.

Preložila T. Dillingrová

BIBLIOGRAPHIE

1. Mérinis J., *Thèse*, Paris 1966.
2. Mérinis J., Bouissières G., *Anal. Chim. Acta* **25**, 498 (1961).
3. Foucher R., Mérinis J., De Pinho A. G., Valadarès M., *Compt. rend.* **255**, 882 (1962).
4. Briangon Ch., Legoux Y., Mérinis J., Muxart R., Vernois J., *Compt. rend.* **259**, 345 (1964).

Adresse d'auteurs:

J. Mérinis, G. Bouissières, Institut de Physique Nucléaire-91, Orsay, France.