

## Окисление монокарбида урана в интервале температур 300—700 °С

ВЛАСОВ В. Г., АЛАБУШЕВ В. А., БЕКЕТОВ А. Р., СЫЧЕВ А. Г.

УДК 546.791.261.094.3

Изменение условий окисления монокарбида урана (состояние твердой фазы, температура опыта, давление и состав газа) влияет не только на скорость, но и на механизм процесса. В результате изучения поведения УС в агрессивных газовых средах получены данные о взаимодействии УС с чистым кислородом при 300—700 °С и давлениях газа от 1,7 до 34 мм рт. ст. Монокарбид урана в виде гранул с составом  $UC_{1,02}$  имел плотность 12,82 г/см<sup>3</sup>. Газообразный кислород содержал не более 1·10<sup>-3</sup> об. % примесей. Процесс осуществлялся в токе газа и непрерывно контролировался по изменению веса образца. На кинетических кривых реализуется последовательно три участка: прямолинейный, параболический, снова линейный. Обработка данных проводилась с помощью уравнений

$$Q = K_0 t + Q_0; \quad (1)$$

$$Q^2 + 2K_2 Q + K_3 = 2K_1 t; \quad (2)$$

$$v = kP_{O_2}^n. \quad (3)$$

При  $P_{O_2} = 7,2 \pm 0,40$  мм рт. ст. в интервале температур 300—450 °С энергия активации составляет 22 ккал/моль, при больших температурах — 3 ккал/моль. Показатель  $n$  в уравнении (3) равен 0,1 на первом линейном участке и 0,43 на параболическом для  $P_{O_2} = 1,7 \div 20,2$  мм рт. ст. Повышение давления приводит к росту  $n$  до 1,63. Рентгенофазовый анализ продуктов

с различной степенью окисления показал наличие карбида (оксикарбида) урана, двуокиси и закиси-окиси урана. Причем закись-окись урана появляется на втором линейном участке окисления. Соотношение окисных фаз также меняется и с увеличением давления газа-окислителя. Химическим анализом обнаружено присутствие в образце свободного углерода, количество которого зависит от степени окисления. Первоначально адсорбированный кислород растворяется в карбиде с образованием оксикарбида с максимальным содержанием кислорода. Окислитель диффундирует через тонкую защитную пленку постоянной толщины. Исходя из теории Вагнера и учитывая природу защитной пленки  $UO_{2+x}$ , можно объяснить наблюдаемое влияние  $P_{O_2}$  на скорость процесса. Найденное значение энергии активации достаточно близко совпадает с энергией активации самодиффузии кислорода в  $UO_2$ . Окисление углерода вносит существенные изменения в характер процесса при температуре выше 450 °С. Вес образца увеличивается за счет присоединения кислорода и уменьшается за счет выгорания углерода и восстановления закиси-окиси урана. В результате температурный коэффициент скорости реакции понижается до 3 ккал/моль. С этим связано и увеличение показателя  $n$  (3) при  $P_{O_2} > 20$  мм рт. ст.

(720/7375. Поступила в Редакцию 25/IV 1973 г. В окончательной редакции 4/IX 1973 г. Полный текст 0,6 а. л., 5 рис., 1 табл., 25 библиографических ссылок.)

## Оптимизация профиля радиационной защиты

ЖАРКОВ В. А., АКОПЯН Ю. Г., САЛАКАТОВА Л. С., ФИЛАТОВ Л. А., ЛЯПУНОВ Н. А.

УДК 621.039.—78

Радиационная защита установок, использующих радиоактивные изотопы, должна обеспечивать снижение уровня излучения до регламентированных постоянных значений, задаваемых обычно на поверхности установок и на расстоянии 1 м от нее.

Методики построения оптимального профиля защиты, удовлетворяющего этому условию, отсутствуют в литературе, вследствие чего на практике часто используются защиты с толщиной, заведомо завышенной для ряда направлений. Это ведет к неоправданному увеличению веса и габаритов установок, перерасходу защитных материалов, а также к увеличению транспортных расходов, что особенно существенно для радиоизотопных генераторов энергии.

В настоящей работе рассматривается расчетный способ построения оптимального профиля радиационной защиты для цилиндрических источников  $\gamma$ - или тормозного излучения применительно к радиоизотопным термоэлектрическим генераторам (РИТЭГ). Способ

основан на применении метода точечного ядра. Подробно анализируется входящее в ядро ослабления выражение для фактора накопления. Требуемое постоянное значение мощности дозы задается на внешней поверхности защиты, профиль которой является предметом исследования. Способ реализован в программах «Гамма» и «Профиль» для ЭЦВМ М-222.

Программа «Гамма» позволяет рассчитать мощность дозы для любой точки на поверхности защиты известной конфигурации. Программа «Профиль» непосредственно предназначена для определения оптимальной конфигурации защиты. Результаты вычислений сравнивались с экспериментальными данными, полученными на двух радиационных макетах РИТЭГ с цилиндрическими источниками на основе <sup>90</sup>Sr. Первоначально макеты были изготовлены с неоптимальным профилем защиты, затем механически обработаны для получения расчетной оптимальной конфигурации. Мощность дозы измерялась на неоптимизированных и оптимизирован-



ных поверхностях, причем в обоих случаях погрешность расчета на превышала  $\pm 20\%$ .

Применение описанного способа оптимизации к радиоизотопным генераторам позволит уменьшить их вес на 20—40% в зависимости от мощности. Способ может

быть также использован и в других радиационных установках.

(721/7417. Поступила в Редакцию 11/VI 1973 г. Полный текст 0,45 а. л., 1 рис., 8 библиографических ссылок.)

## Распределение термализованных электронов в веществе

ВОРОБЬЕВ А. А., ЯЛОВЕЦ А. П.

УДК 539.424.17

Для решения ряда практических задач (например, при облучении полимеров, керамик, стекол и т. д.) необходимы данные объемного распределения заряда, который образуется вследствие термализации быстрых электронов.

Распределение термализованных электронов (РТЭ) с начальной энергией выше 1 Мэв определялось экспериментально в работах [1, 2]. Настоящая статья посвящена расчету РТЭ в различных материалах при энергиях падающего пучка ниже 1 Мэв. В основу расчета положено решение кинетического уравнения, записанного в рамках «модели отрезков» [3], в котором осуществляется шаг по энергии, а флуктуации в потерях энергии определяются через флуктуации в пробегах. Проводилось сравнение рассчитанных РТЭ с экспе-

риментальными [1, 2]. Результаты согласуются в пределах ошибок эксперимента. Приведены таблицы РТЭ для энергий 1; 0,7; 0,5; 0,3; 0,1 Мэв в углероде, алюминии и меди.

(722/7449). Поступила в Редакцию 19/VI 1973 г. Полный текст 0,5 а. л., 4 рис., 5 табл., 16 библиографических ссылок.)

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Tobato T. e. a. «Phys. Rev.», 1971, v. 3, p. 572.
2. Grose B., Wright K. «Phys. Rev.», 1959, v. 114, № 3, p. 725.
3. Евдокимов О. Б. «Изв. вузов. Физика», 1973, № 1, с. 17.

## Разделение изотопов азота методом непрерывной адсорбции

САРУХАНОВ А. В., КОЧУРИХИН В. Е., МАГОМЕДБЕКОВ Э. П., ЗЕЛЬВЕНСКИЙ Я. Д.

УДК 621.039.249

Методом однократного изотопного уравнивания на вакуумной циркуляционной установке измерены коэффициенты разделения изотопов азота при адсорбции на цеолите NaX при давлении 30—720 торр и  $T = 78^\circ\text{K}$ . Показано, что коэффициент разделения не зависит от давления и составляет  $1,016 \pm 0,002$ . При этой же температуре исследовано разделение изотопов азота методом непрерывной адсорбции на цеолите NaX на лабораторной установке.

В работе использовался азот природного изотопного состава и шариковый синтетический цеолит NaX-ШМ-61 с размером гранул 2—2,5 мм. Колонна непрерывной адсорбции состояла из трех основных частей: адсорбер, разделительная секция и десорбер. Адсорбент двигался под действием силы тяжести сплошным слоем сверху вниз по колонне. Скорость его движения регулировали изменением скорости вращения диска дозатора, расположенного на выходе из колонны. Температура десорбера, расположенного ниже разделительной секции, а также верхней и нижней емкостей для адсорбента поддерживалась в интервале 100—120°С. При более низкой температуре наблюдалась незначительная адсорбция азота на цеолите NaX, приводящая к снижению степени разделения вследствие отбора. Все опыты на колонне проводили в безотборном режиме. Стационарное состояние достигалось через 4—12 ч (в зависимости от условий опыта).

Пробы газа для определения изотопного состава отбирали на концах разделительной секции. Анализ на содержание изотопа  $^{15}\text{N}$  проводили на масс-спектрометре МИ-1305. Изучалась зависимость степени разделения и высоты, эквивалентной теоретической ступени разделения (ВЭТС), от давления газа в колонне и скорости движения адсорбента. Показано, что при постоян-

ной скорости движения адсорбента 3,2 см/мин зависимость степени разделения от давления проходит через максимум при давлении 500 торр, ВЭТС составляет 5,7 см. С увеличением скорости движения адсорбента до 6,3 см/мин максимум перемещается в область более высоких давлений (700 торр), ВЭТС возрастает до 9,2 см. При постоянном давлении увеличение скорости движения адсорбента приводит к резкому падению степени разделения и линейному возрастанию ВЭТС. Полученные в проведенных опытах значения ВЭТС, равные 5—15 см, близки к значениям ВЭТС, наблюдаемым в процессах химического изотопного обмена в системах газ — жидкость.

На основании полученных результатов рассчитаны коэффициенты массопередачи  $\beta$ . Показано, что при давлении 150 торр величина  $\beta$  не зависит от скорости движения адсорбента в исследованном интервале скоростей и составляет 112 000 моль/м<sup>3</sup>·ч. Высказано предположение, что при давлении 150 торр во всем изученном интервале скоростей лимитирующей стадией процесса массопередачи является внутренняя диффузия. В области больших давлений на процесс массопередачи оказывает существенное влияние внешняя диффузия, что, вероятно, связано с уменьшением коэффициента самодиффузии азота. Так, при давлении 570 торр с увеличением скорости движения адсорбента от 2,0 до 7,3 см/мин значение  $\beta$  возрастает от 122 000 до 196 000 моль/м<sup>3</sup>·ч. Показано, что коэффициент внутренней массопередачи пропорционален давлению в степени 1/2.

(№ 712/7425. Поступила в Редакцию 19 июня 1973 г. Полный текст 0,45 а. л., 4 рис., 1 табл., 9 библиографических ссылок.)