

Можно ли восстановить уран из гексафторида до элементарного состояния водородом?

ТУМАНОВ Ю. Н., ГАЛКИН Н. П.

УДК 546.791.6.161:669.094.1

В работе анализируются результаты безуспешных попыток восстановить элементарный уран из гексафторида плазменным водородом по схеме, приведенной на рисунке. Основные продукты восстановления — тетрафторид урана или смесь последнего с низшими

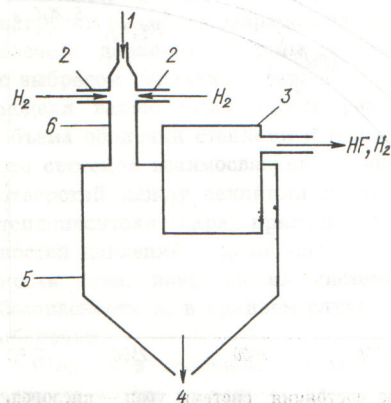


Схема реактора для восстановления урана из гексафторида урана плазменным водородом:

1 — гексафторид урана; 2 — плазматрон; 3 — фильтр; 4 — тетрафторид урана; 5 — приемник продуктов реакции; 6 — плазменный реактор-смеситель.

фторидами урана, брутто-состав которых находится в пределах 3,68—4,0. Состав этих продуктов мало зависит от температуры реакции (она достигает 3000—5000° К), мольного соотношения $H_2 : UF_6$ (6,4—640) и расхода электроэнергии.

Для объяснения экспериментальных результатов рассматривается термодинамика реакций в системе $UF_6 - H_2$, а также кинетика рекомбинационных процессов и фазовых переходов в приемнике продуктов реакции. Показано, что большие значения констант равновесия суммарных реакций восстановления урана из гексафторида молекулярным и атомарным водородом обусловлены в основном первыми двумя сомножителями

в произведении $K_p = \prod_i k_{p_i}$, где k_{p_i} — константы

равновесия промежуточных реакций. Последующие реакции термодинамически не идут до конца даже при температурах 3000—5000° К, где уравнения восстановления имеют по существу формальный характер. Действительно, при температурах выше 3000° К водород теряет восстановительную способность, поскольку он не образует термодинамически устойчивого соединения с фтором. Понижение валентности урана в системе $UF_6 - H_2$ происходит вследствие термического разложения фторидов урана, которые диссоциируют в условиях плазменных температур. Поэтому при взаимодействии гексафторида урана с плазменным водородом последний при температурах выше 3000° К играет роль не восстановителя, а теплоносителя.

Поскольку реакции в плазменных теплоносителях протекают в условиях, близких к термодинамическому равновесию, а реакции восстановления урана из гексафторида водородом термодинамически не идут до конца даже при 5000° К (пока технически трудно нагреть водород даже до этой температуры), делается вывод о бесперспективности применения водородного восстановления для получения элементарного урана из гексафторида.

Элементарный уран можно получить из гексафторида, если нагреть последний (при $p = 1$ атм) до ~6000° К. Однако выделить уран или фториды, в которых валентность урана ≤ 3 , можно только при условии, если при выходе из реактора скорость конденсации будет больше скорости газовой рекомбинации урана или фторидов урана. Оценка показывает, что это условие выполнимо для низших фторидов урана и, по-видимому, для урана.

Результаты исследования показывают, почему тетрафторид урана является основным продуктом взаимодействия гексафторида урана с водородом в отсутствие специальной закалки: на выходе из плазменного реактора протекает конденсация продуктов восстановления и рекомбинация фторидов урана в гетерофазной области до наиболее термодинамически устойчивого в этих условиях соединения — тетрафторида урана. (№ 752/7744. Поступила в Редакцию 18/II 1974 г. Полный текст 0,55 а. л., 2 рис., 4 табл.)

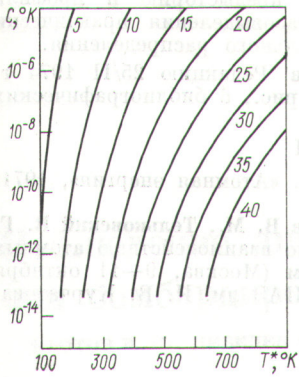
Расчет некоторых параметров диффузии и газовыделения частиц при прогреве образцов после ионной бомбардировки

ПИСАРЕВ А. А. ПИСАРЕВ В. А.

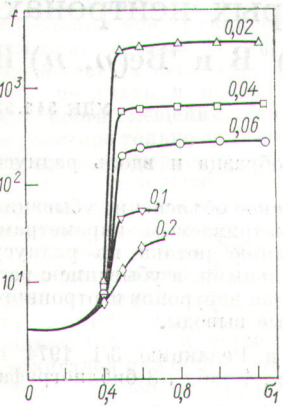
УДК 539.12.17:533.15

Приведены результаты машинных расчетов по диффузии и газовыделению частиц, внедренных в металл при ионной бомбардировке. Вычисления основаны на решении одномерного уравнения диффузии, определенного на полубесконечной прямой с нулевыми гранич-

ными условиями. Гауссова начальная функция распределения частиц $c(x, 0)$ обрезана на некотором расстоянии x_0 от вакуумной поверхности $x = 0$ для удовлетворения граничному условию $c(0, t) = 0$. Газовый поток j из металла в вакуум определяется первым уравнением



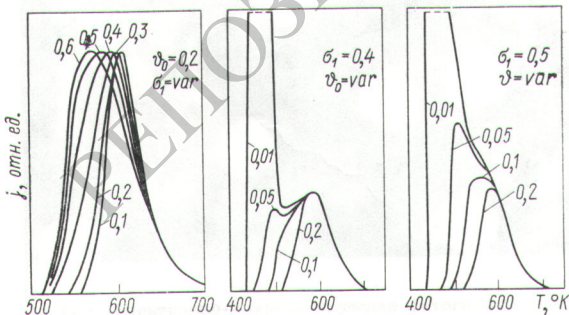
Р и с. 1. Изоэнергетические кривые зависимости параметра C от характерной температуры T^* при различных значениях энергии активации для диффузии $Q = 5 \div 40$ ккал/моль.



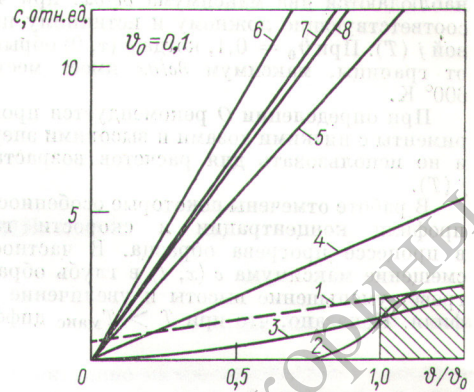
Р и с. 2. Зависимость параметра газовыделения f от σ_1 для различных значений ϑ_0 .

Фика. Решение уравнения диффузии выполнено для случая линейного во времени увеличения температуры T со скоростью a . Распределение частиц в образце рассматривалось в безразмерных координатах $\vartheta = x/x_m$, где x_m — координата центра $c(0, t)$.

Согласно работе [1], энергию активации для диффузии Q можно вычислить по какой-либо характерной температуре T^* на колоколообразной кривой $j(T)$. На рис. 1 приведены изоэнергетические кривые, упрощающие определение Q по величине T^* и параметру $C = p_m^2 a / F k_0$ (F — параметр, зависящий от выбора T^* ,



Р и с. 3. Зависимость $j(T)$ для различных комбинаций параметров ϑ и σ_1 .



Р и с. 4. Зависимость концентрации частиц в образце от глубины ϑ/ϑ_0 вблизи $\vartheta = \vartheta_0$ на разных стадиях прогресса при $\sigma_1 = 0,3$: 1 — часть начального распределения; кривые 2—8 построены соответственно для температур 450—750° К с шагом 50° К; значения c на кривых 6—8 увеличены соответственно в 10, 100, 1000 раз.

k_0 — частота колебаний решетки; $p_m = x_m/\lambda$; λ — параметр решетки).

В качестве T^* предпочтительно использовать температуру T_{\max} появления максимума $j(T)$; в этом случае $F = f$. Показано, что T_{\max} и f зависят от формы $c(0, t)$. На рис. 2 показана зависимость $f(\sigma_1)$ для различных ϑ_0 , где σ_1 — относительная полуширина гауссовой функции $c(0, t)$; $\vartheta_0 = x_0/x_m$. Существенно, что при малых σ_1 параметр f и величина T_{\max} практически постоянны.

Расчеты $j(T)$ (рис. 3) объясняют экспериментально наблюдаемое в работе [2] малое изменение хвоста функции $j(T)$ и ее смещение в низкотемпературную область при увеличении ширины $c(0, t)$; кроме того, они свидетельствуют о том, что резкое возрастание $f(\sigma_1)$ и уменьшение $f(\vartheta_0)$ связаны с появлением ложного низкотемпературного максимума на $j(T)$.

Показано, что использованная при вычислениях диффузионная модель не применима для широких первоначальных распределений из-за появления в $j(T)$ ложных пиков, которые обусловлены аномально большими градиентами концентраций вблизи вакуумной границы, возникающими на начальной стадии прогресса. Из рис. 4 следует, что при малой величине $\vartheta_0 = 0,01$

наблюдаются два максимума $\partial c/\partial x$: при 450 и 600° К, соответствующие ложному и истинному пикам на кривой $j(T)$. При $\Phi_0 = 0,1$, когда $c(x, 0)$ обрывается далеко от границы, максимум $\partial c/\partial x$ имеет место лишь при 600° К.

При определении Q рекомендуется проводить эксперименты с низкими дозами и высокими энергиями ионов и не использовать для расчетов возрастающую ветвь $j(T)$.

В работе отмечены некоторые особенности изменения профиля концентрации и скорости газовой выделения в процессе прогрева образца. В частности показано смещение максимума $c(x, t)$ в глубь образца при прогреве, уменьшение высоты и увеличение ширины профиля. Показано, что при $T > T_{\text{макс}}$ диффундирующие

частицы «забывают» свою предысторию и профиль концентрации и кривые газовой выделения практически не зависят от формы начального распределения. (№ 753/7752. Поступила в Редакцию 25/II 1974 г. Полный текст 0,4 а. л., 4 рис., 6 библиографических ссылок.)

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Беграмбеков Л. Б. и др. «Атомная энергия», 1971, т. 31, вып. 6, с. 625.
2. Писарев А. А., Сотников В. М., Тельковский В. Г. В сб.: II Всес. симп. по взаимодействию атомных частиц с твердым телом (Москва, 9—11 октября 1972). М., изд. ОНТИ ИАЭ им. И. В. Курчатова, 1972, с. 240.

Учет геометрии в активационном анализе на быстрых нейтронах, генерируемых на циклотроне в реакциях ${}^9\text{Be}(d, n){}^{10}\text{B}$ и ${}^9\text{Be}(p, n){}^9\text{B}$

УДК 543.53

МУМИНОВ В. А., АКАБИРОВ Б., АБИБУЛЛАЕВ Н.

Учет геометрии облучения образцов в нейтронно-активационном анализе имеет важное значение, особенно в случае, когда источником быстрых нейтронов является толстая мишень, бомбардируемая ускоренными на циклотроне заряженными частицами.

С помощью известных функций угловых распределений нейтронов из реакций ${}^9\text{Be}(d, n){}^{10}\text{B}$ и ${}^9\text{Be}(p, n){}^9\text{B}$ и вспомогательного геометрического построения получена элементарная формула, по которой вычисляли зависимость убывания потока нейтронов при различных

расстояниях от мишени до образца и вдоль радиуса образца.

Дано табличное и графическое объяснение убывания потока нейтронов по рассматриваемым параметрам. Расчетные данные по убыванию потока по радиусу сравниваются с экспериментальными, а убывание с расстоянием — с убыванием потока нейтронов изотропного излучения. Сделаны некоторые выводы.

(№ 754/7681. Поступила в Редакцию 3/I 1974 г. Полный текст 0,3 а. л., 4 рис., 1 табл., 3 библиографические ссылки.)



РЕПОЗИТОРИЙ ГТН