

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 UC в агрессивных газовых средах получены данные о взаимодействии UC 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/см³. Газообразный кислород содержал не более 1·10⁻³ 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 $P_{O_2} = 7,2 \pm 0,10$ 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 установки 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 γ - 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 ⁹⁰Sr. Первоначально макеты были изготовлены с неоптимальным профилем защиты, затем механически обработаны для получения расчетной оптимальной конфигурации. Мощность дозы измерялась на неоптимизированных и оптимизирован-