### КИНЕТИКА ПЛАЗМЫ ГЕКСАФТОРИДА УРАНА

# С.К. Кунаков

Алматинский технологический университет, г.Алматы

В данной работе представлена кинетическая модель плазмы  $UF_6$ , образуемой в активной зоне ядерного реактора, и проведен численный расчет ионного состава плазмы.

#### Введение

Плазма  $UF_6$ , образованной в активной зоне ядерного реактора, обладает рядом специфических особенностей, вызванных принципиально открытой структурой таких установок по носителям высоких энергий. Это вызывает ряд экспериментальных проблем. Возникает необходимость дистанционного управления процессами; невозможность повторного использования всех экспериментальных устройств и регистрирующей аппаратуры. Экспериментальные сложности связаны и с наличием: наведенной радиоактивности, необратимых структурных изменений в материалах, токсичности и химической агрессивности исходных материалов. До настоящей работы многие методические вопросы также оставались открытыми и не были исследованными и это касается зондовой диагностики (теоретическая интерпретация зондовых характеристик для слабо ионизированной плазмы содержащей отрицательные ионы).

Исследования кинетики плазмы гексафторида урана высокого давления, образованной продуктами ядерных реакций являются большей и необходимой частью комплексной программы по прямому эффективному преобразованию ядерной энергии в другие виды, а диагностика плазмы UF6 являлась задачей требующей кропотливых и тщательных экспериментальных и теоретических исследований кинетики элементарных процессов.

Для интерпретации ВАХ необходимо оценить ионный состав плазмы. В рассматриваемой кинетической модели были учтены следующие элементарные процессы. Осколки деления, которые образуются при взаимодействии тепловых нейтронов с 255 U, характеризуются начальными энергиями, лежащими в диапазоне 50-115 МэВ, начальными зарядами от 16 до 24 e и массами от 70 до 160 а.е.м. Под действием высокоэнергетичных осколков деления урана в газе образуется каскад быстрых электронов. Эти электроны и осколки деления производят ионизацию молекул [1]:

$$UF_6 + (ff) \rightarrow UF_6^+ + e + (ff)', \tag{1}$$

$$UF_6 + (ff) \rightarrow UF_6^* + (ff)', \tag{2}$$

$$UF_6 + (ff) \rightarrow UF_6 + F + e + (ff)', \tag{3}$$

$$UF_6^* \to UF_5 + F , \qquad (4)$$

$$UF_6^* + \to UF_4 + F_2. \tag{5}$$

Скорости процессов ионизации и возбуждения, отнесенные к единице объема, оценивались по формуле [2].

$$S_i = \Phi q_{\text{gen}} E N / U_i, \tag{6}$$

где  $\Phi$  - поток тепловых нейтронов,  $q_{\text{дел}}$  - сечение ядерной реакции, E - энергия деления, N - концентрация делящегося вещества,  $U_i$  - энергетическая цена образования соответствующего продукта в данной реакции.

#### Кинетика

Потенциал ионизации гексафторида урана  $I.P(UF_6) = 13.86$  эв. Сечение ионизации гексафторида урана в диапазоне от потенциала ионизации до 100 эв меняется примерно линейно от нуля до 20  $\dot{A}^2$ . Сечение прилипания электронов к гексафториду урана имеют два максимума в области 2,15 эв ,второй в области 7 эв. Сечение в первой точке равно  $(2,7\pm1)\dot{A}^2$ . Пик концентрации  $UF_5^-$  также находится в области 2,7 эв. Сродство электрона к  $UF_6$  равно  $(5,2\pm0,5)$  эв. Значение энергии связи

$$D(UF_5 - F^-) = 108 \pm 6 \frac{kcal}{mol}$$
(7)

Образование  $UF_5^-$  происходит в соответствии с реакцией

$$e + UF_6 \to UF_5^- + F \tag{8}$$

Процесс же прилипания электрона, приводящий к образованию  $UF_6^-$  характеризуется довольно низкой скоростью [1]. Принято считать, что к возникновению  $UF_6^-$  приводит реакция перезарядки [1].

$$UF_5^- + UF_6 \to UF_6^- + UF_6 \tag{9}$$

При этом наиболее значительное разрушительное действие производят осколки деления. Молекулы  $UF_6$  под действием радиоактивного излучения реактора будут разрушаться на низшие фториды и фтор. В предположении, что диссоциация молекул  $UF_6$  идет по каналу

$$UF_6 \to UF_5 + \frac{1}{2} \cdot F, \tag{10}$$

в работах [2] определена скорость разрушения  $UF_6$  на единицу мощности. В пределах ошибки измерения скорость радиолиза молекул  $UF_6$  не зависит от давления и мощности дозы и составляет величину 0.28 моль/кВт.ч поглощенной энергии или (0.8±0.1) молекул/100 эВ. Вместе с тем известно, что фториды сравнительно легко фторируются с повышением температуры до гексафторида газообразным фтором:

$$UF_5 + F + M \to UF_6 + M \tag{11}$$

$$UF_4 + F_2 + M \to UF_6 + M \tag{12}$$

где М - третья частица.

Следовательно, при длительном облучении гексафторида урана (100 - 104 ч) устанавливается стационарное состояние. Значения концентраций  $UF_6$  и продуктов его радиолиза в стационарном состоянии определяются мощностью дозы, начальным давлением и температурой.

Выше перечисленные положительные и отрицательные ионы, электроны и продукты диссоциации интенсивно взаимодействуют друг с другом.

Константы плазмохимических реакций для UF<sub>6</sub> являются оценочными и взяты из работ [1].

$$F + F + M \to F_2 + M \tag{13}$$

$$e + F_2 \to F^- + F \tag{14}$$

$$e + UF_6^+ \to UF_4 + F_2 \tag{15}$$

$$e + UF_6^+ + M \to UF_6 + M \tag{16}$$

$$F^- + UF_6 \to UF_6^- + F \tag{17}$$

$$UF_6^+ + UF_6^- \to 2 \cdot UF_6 \tag{18}$$

$$UF_{6}^{+} + UF_{6}^{-} + M \to UF_{6} + UF_{5} + F + M$$
(19)

$$UF_6^+ + F^- + M \to UF_6 + F + M \tag{20}$$

# Численные расчеты и результаты эксперимента

Система уравнений описанной математической модели решалась численно. Для согласования с экспериментальными условиями по исследованию плазмы зондовым методом в представленных расчетах давление  $UF_6$  принято равным 20 Торр, поток тепловых нейтронов меняется от  $3 \cdot 10^{11}$  до  $1, 5 \cdot 10^{13}$  нейтрон см<sup>-2</sup>с<sup>-1</sup>.

Решение задачи о нахождении основных характеристик неравновесной ядерно возбуждаемой плазмы естественно начинать с анализа распределений продуктов ядерных реакций и образуемых ими электронов по энергиям.

Количественное определение доли рекомбинационного потока идущего на уровне с n=3, требует решения системы нелинейных дифференциальных уравнений вида:

$$\frac{dN_m}{dt} = \sum_m k_{mm'} N_m + \delta'_m$$
(21)

с учетом ФРЭЭ. Здесь зависящие от переменных и параметров модели коэффициенты  $k_{mm'}$  характеризует скорости столкновительных и радиационных превращений  $m \to m'$ , члены  $\delta'_m$  - представляют собой потоки в состоянии m, обусловленные наличием положительных источников.

Поскольку плотность рассматриваемой плазмы достаточна высока, система уравнений для населенностей возбужденных уровней гелия была дополнена процессами тушения в реакциях ассоциативной ионизации, а также передаче возбуждения между уровнями с одинаковым главным квантовым числом. Система уравнений (1-18), дополненная уравнением сохранения заряда

$$UF_6^- + UF_5^- + F^- + n_e = UF_6^+$$
(22)

решалась численным методом Гира для жестких систем [4].

Далее, в виду того, что зондовые измерения проводились в течении 2-3 часов, полагаем, что в рассматриваемых условиях концентрация гексафторида урана  $UF_6$  в формуле (3) равна исходному содержанию.

В таблице 1 представлены результаты расчетов для условий проводимых экспериментов по зондовой диагностике  $UF_6$ 

n <sub>e</sub>	$UF_6^+$	$UF_6^-$	$UF_5^-$	$F^{-}$	F	$F_2$	$UF_5$	$UF_4$
$5,9 \cdot 10^{6}$	$2, 6 \cdot 10^{11}$	$2, 6 \cdot 10^{11}$	2,1·10 <sup>6</sup>	$4, 2 \cdot 10^4$	$7, 7 \cdot 10^{13}$	$7, 7 \cdot 10^{16}$	$3,9 \cdot 10^{14}$	$4, 0.10^4$

<b>T 7</b>	1	-3
Габлица	Концентрация компонент плазмы рексафторила урана	CM
таолица	топцептрация компонент плазыв тексафторида урана,	CIVI

Как следует из таблицы, основным отрицательным ионом в данной смеси является ион  $UF_6^-$ . Его концентрация равна концентрации  $UF_6^+$  (с точностью до пятого знака). Содержание  $UF_6^+$ определяется ионизацией и гибелью в реакциях рекомбинации с  $UF_6^-$ . Концентрация электронов невелика. Результаты расчетов показывают, что отношение концентрации электронов к суммарной концентрации отрицательных ионов составляет величину порядка  $10^{-4}$ . Из расчета следует также, что концентрация электронов определяется ионизацией и прилипанием к молекулам  $UF_6$ .

Данные численного счета о том, что концентрация отрицательных ионов на много больше концентрации электронов, соответствует выводам, сделанным из анализа ВАХ. Далее, концентрация n-пропорциональна корню квадратному плотности потока тепловых нейтронов, т.е  $\Box \sqrt{\Phi}$ , концентрация электронов пропорциональна потоку, т.е  $\Box \Phi$ . Следовательно, с ростом  $\Phi$ ,  $n_e$  растет быстрее, чем  $n_{\infty}^-$  и  $\sigma_{\infty}^6$  становиться сравнимой с  $\sigma_{\infty}^-$ .

На рисунке 2 представлены расчетные и экспериментальные значения концентраций положительных ионов  $UF_6^+$ , вычисленные из ВАХ по методикам [2]. Экспериментальные и расчетные значения концентраций  $UF_6^+$  находятся в удовлетворительном согласии. Ввиду того, что при малых уровнях мощности реактора (100, 500 кВт)  $n_-\mu_- \square n_e\mu_e$ .



Рис.2. Зависимость концентрации заряженных частиц от плотности потока тепловых нейтронов (\_\_\_\_\_\_\_расчет; эксперимент; 1-  $UF_6^+$ ; 2 - Ne; 3 -  $UF_5^-$ )

### Выводы

Разработана кинетическая модель плазмы  $UF_6$  и проведен численный расчет ионного состава плазмы. Из результатов расчетов следует, что основными положительными ионами являются ионы  $UF_6^+$  отрицательными  $UF_6^-$  отношение концентрации электронов к суммарной концентрации отрицательных ионов составляет величину порядка 10-4 для уравнений мощности 100 и 500 кВт, т.е. Концентрация пе определяется скоростями ионизации и прилипания к молекулам  $UF_6$ . Концентрация  $UF_6^+$  и  $UF_6^-$  пропорциональна  $\Box \sqrt{\Phi}$ , электронов  $-\Box \Phi$ . Концентрация положительных ионов, определенная из экспериментальных зондовых характеристик удовлетворительно согласуется с расчетом.

Интерпретация ВАХ различными методами позволила впервые определить коэффициенты диффузии (подвижности) ионов в плазме гексафторида урана, образованной в центре активной зоны реактора.

#### Литература

1. R.N.Compton, On formation of positive and negative ions in gaseous  $UF_6$ , The Joural of Chemical Physics, Vol.66, Number 10, pp4478-4486.

2. Davis R.N., Davis J.F., Sohneider R.T. Nuclear pumping lasers, induced by pulsed reactors// Trans. Amer. Nucl.Soc.-1976.-Vol. 23.-P.520-523.

3. Дмитриевский В.А.,Е.М.Воинов, Тетельбаум С.Д. Применение гесафторида урана в ядерных энергетических установках .//Атомная энергия.-1970.-Т.29, №.4.- С.45-52.

4. R. Bektursunova, S. Kunakov Singular Perturbation Model of Electric Probe in Slightly Ionised Plasmas with Negative Ions // Plasma Physics Reports 25.-1999.-21c.

5. Р. Бектурсунова, С. Кунаков Методы сингулярных возмущений в слабо ионизованной плазме с отрицательными ионами // Физика Плазмы, 1999.- Т.25,№10.-С.1-5.

6. Thom K. and Schneider R.T. Measurements methods for fission fragment generated plasmas// Nuclear Pumped Gas. Lasers, AIAA Journal,-1972.-Vol.10.-P.400-406.

# ГЕКСАФТОРИД УРАН ПЛАЗМАСЫНЫҢ КИНЕТИКАСЫ

# С.К. Қонақов

Бұл жұмыста ядролық реактордың белсенді аумағында пайда болатын *UF*<sub>6</sub> плазмасының кинетикалық моделі ұсынған және плазманың иондық құрылымың сандық зерттеуі жүргізілген.

# KINETICS OF HEXAFLUORIDE URANIUM

# S.K. Kunakov

In the paper the kinetic model of the plasma  $UF_6$  formed in an active zone of a nuclear reactor is submitted, and numerical calculation of ionic structure of plasma is lead.