

УДК 546.791+536.45

Дисперсность и химический состав порошков, образующихся при высокотемпературном воздействии на уран- содержащие объекты

Рассматриваются результаты исследований дисперсности и химического состава порошкообразных продуктов горения, образующихся при высокотемпературном воздействии на урансодержащие объекты. Данные о количественном и качественном составе порошкообразного вещества являются определяющими параметрами для оценки масштабов аварий и разработки методов ликвидации их последствий.

**А. А. Аушев, В. А. Афанасьев,
Л. Ф. Беловодский, А. Н. Гевлич,
А. В. Комиссаров, Н. М. Крекнина,
А. С. Митяшин, В. Н. Попов,
Р. М. Тагиров**

Введение

Исследование поведения урана при высокоинтенсивных воздействиях, таких как пожар и взрыв, чрезвычайно важно с точки зрения ликвидации последствий аварий. Анализ возможных аварийных ситуаций в жизненном цикле урансодержащих объектов показывает, что наиболее вероятной ситуацией является пожар. При этом диапазон тепловых воздействий очень разнообразен. Тепловое воздействие является особенно опасным для объектов, содержащих в своем составе наряду с ураном взрывчатые вещества (ВВ), которые в случае загорания при пожаре могут привести к повышению температуры воздействия на уран. Это, в свою очередь, будет влиять на процесс диспергирования (порошкообразования) урана. На этот процесс в определенной мере должны влиять материалы, которые могут входить в контакт с ураном, переходящим при расплавлении в чрезвычайно химически активное состояние [1].

Особую опасность для персонала, занимающегося ликвидацией последствий аварий с объектами, содержащими уран, представляет порошкообразное вещество, в особенности частицы респираторной фракции. Подобным веществам свойственны вторичное пылеобразование и перенос в приземном слое воздушной среды при их локализации. Это приводит к дополнительному загрязнению окружающей среды и поступлению респираторной фракции в организм человека.

В связи с этим данные о количественном и качественном составе порошкообразного вещества являются существенными параметрами для оценки масштабов аварий и разработки методов ликвидации последствий.

Постановка опытов

В опытах моделировались высокотемпературные воздействия, характерные для двух типов пожаров: пожар транспортного средства и пожар транспортного средства, сопровождающийся горением ВВ.

Более подробно условия проведения опытов, их постановка, описание установки для исследования объектов на высокотемпературные воздействия и общие наблюдения в опыте приводятся в работе [2].

В опытах проводились измерения температуры среды в зоне размещения объекта, а также температуры урановых образцов. После опытов остатки объектов анализировались и проводился весовой баланс. В первой серии опытов исследовалось диспергирование урана, не имеющего контакта с конструкционным материалом, высокотемпературная среда по температуре соответствовала пожару транспортного средства. В качестве объекта испытаний использовалась урановая оболочка с удельной поверхностью $0,48 \text{ см}^2/\text{г}$ в открытом виде, т. е. уран подвергался непосредственному высокотемпературному воздействию. Во второй серии исследовалось диспергирование урана, находящегося в стальном бьюксе, и среда по интенсивности теплового воздействия соответствовала пожару, протекающему с горением ВВ. В качестве объекта испытаний использовалась урановая оболочка с удельной поверхностью $0,53 \text{ см}^2/\text{г}$, находящаяся внутри стальной оболочки (массовое соотношение урана и стали 2,5:1).

Основные результаты опытов

Режимы высокотемпературного воздействия. Длительность теплового воздействия, максимальные значения температуры среды (активной зоны воздействия) и разогрева урановых оболочек приведены в табл. 1.

Таблица 1

Режимы нагрева, реализованные в опытах

Объект испытания	Длительность высокотемпературного воздействия, мин	Режим нагрева	
		Максимальная температура среды, °С	Максимальная температура разогрева урана, °С
Уран	~ 45	1080–1160	1040–1080
Уран в стальном бьюксе	~ 45	1570–1670	~ 1500

Массовый состав остатков. В результате взаимодействия открытого и защищенного урана с высокотемпературной средой образовались остатки, состоящие из двух компонентов: сыпучего материала – порошка – и твердого монолитного вещества. В первой серии твердый остаток представлял собой форму исходной урановой оболочки, частично выгоревшей в виде ажурной сетки с множеством отверстий и "бахромы", во второй – монолитный слиток, состоящий из интерметаллидных соединений и эвтектик урана с материалом защитной оболочки.

Для определения баланса масс образовавшийся порошок был разделен на две фракции: с размерами частиц менее 2 мм и более 2 мм. В табл. 2 приведено содержание в остатке порошка с размерами частиц менее 2 мм, отнесенное к общей массе остатков.

Таблица 2

Содержание в остатке порошка

Объект испытания	Длительность высокотемпературного воздействия, мин	Содержание порошка в остатке, %
Уран	~ 45	55–60
Уран в стальном бьюксе	~ 45	30–40

Дисперсность порошков. Дисперсность (фракционный состав) порошков определялась методами ситового и седиментационного (фракции с размерами частиц менее 25 мкм) анализов. Массовую долю фракции определяли как отношение массы порошка данной фракции к суммарной массе всех фракций. Характер распределения частиц порошка по фракциям представлен в табл. 3 и на рис. 1.

Таблица 3

Фракционный состав порошков

Размер фракции, мкм	Массовая доля фракции (уран), %	Массовая доля фракции (уран в стальном бьюксе), %
>1000	4,9	12,4
1000–500	18,0	12,2
500–315	9,0	6,3
315–250	4,1	3,2
250–200	3,0	2,9
200–160	4,3	4,5
160–100	6,2	7,8
100–90	2,0	2,5
90–80	2,5	2,8
80–71	1,1	1,0
71–63	1,8	2,3
63–50	5,0	5,5
50–40	2,4	1,5
40–36	12,0	10,6
36–32	10,8	9,7
32–28	5,4	7,5
28–25	3,6	3,5
25–10	2,2	3,2
< 10	1,7	0,6

Анализ дисперсности свидетельствует, что в опыте с открытым ураном крупных частиц (более 300 мкм) и мелких частиц, т. е. респиральной фракции (менее 10 мкм), образовалось больше, чем в опыте с ураном, находящимся в стальном бьюксе. Так, в опыте с ураном, находящимся в контакте со стальным бьюксом, в остатке содержится около 0,6 % респиральной фракции от общей массы частиц (порошка). В опыте с открытым ураном в остатке этих фракций почти в три раза больше, что составляет 1,7 %.

Среди частиц продуктов сгорания можно выделить большинство типовых форм, характерных для порошкообразных материалов. Имеются частицы округлой формы, угловатые с наличием криволинейных поверхностей, угловатые с наличием острых углов и плоских граней, стержневой формы, игольчатые, пластинчатые округлой и угловатой формы (рис. 2).

При этом было обнаружено, что частицы порошка имеют развитую структуру трещин и легко разрушаются при механических воздействиях (рис. 3). Разрушение частиц имеет место также при попадании их в жидкую среду, например в воду.

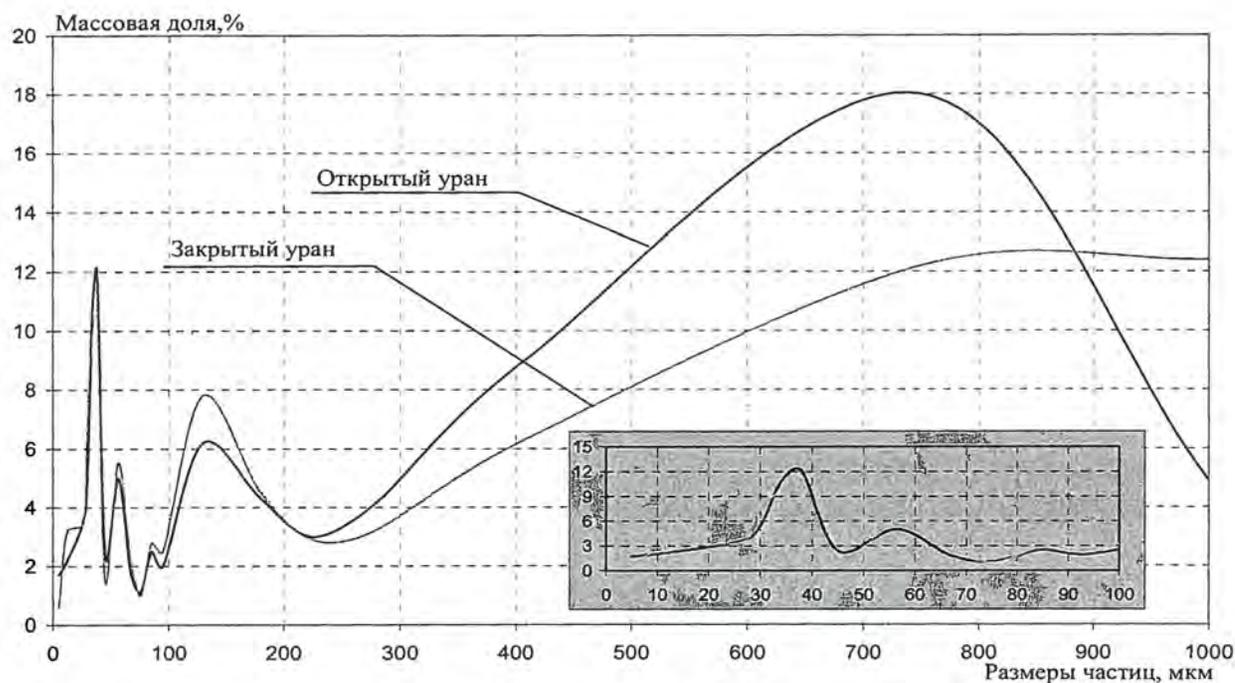


Рис. 1. Распределение частиц по фракциям

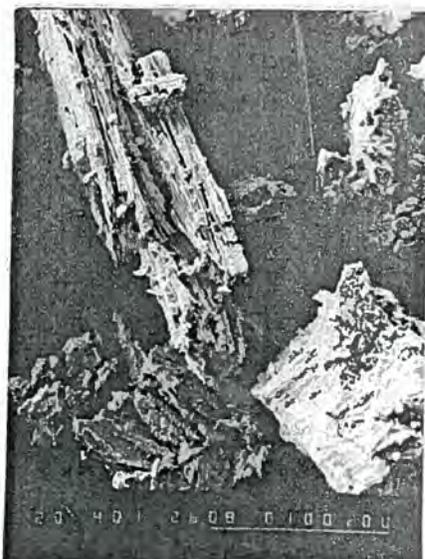


Рис. 2. Частицы пластинчатые угловатые



Рис. 3. Частицы с развитой структурой трещин

Химический состав порошков. В опыте с открытым ураном порошок состоит из урана, находящегося в окисленном состоянии, в основном в фазе U_3O_8 с примесью UO_2 .

С целью исследования зависимости химического состава порошка в опыте с ураном, находящимся в бунке, от размера его частиц проведены анализы по определению массовой доли урана и железа в различных по дисперсности фракциях этого порошка и определено отношение массовых долей урана и железа. Результаты анализов приведены в табл. 4.

Таблица 4

Массовые доли урана и железа в различных фракциях порошка

Размеры частиц, мкм	Отношение массовых долей урана и железа (м.д.U/ м.д.Fe)
>1000	1,9
500-350	3,0
312-250	3,4
250-200	3,9
200-160	6,0
160-100	8,3
100-90	9,4
90-80	9,2
80-71	11,2
71-63	9,7
63-50	9,6
50-40	9,6
40-36	11,3
36-32	12,2
32-28	14,0
28-25	16,7
<25	19,7

Отношение массовых долей урана и железа в зависимости от дисперсности порошков графически изображено на рис. 4. Точкам на кривой соответствуют усредненные значения размеров частиц и отношения массовых долей урана к железу (U/Fe).

По результатам проведенных исследований химического состава рассеянных фракций порошка после пожарного опыта с ураном, находящимся в стальном бьюксе, получено, что в порошке содержится урана больше, чем железа, и установлена зависимость содержания урана и железа от дисперсности порошков: с возрастанием дисперсности увеличивается массовая доля урана и уменьшается массовая доля железа. При этом порошок состоит из урана и железа, находящихся в окисленном состоянии. Основу порошка составляет фаза U_3O_8 , в качестве примесей присутствуют фазы Fe_2O_3 и UO_2 , причем со снижением дисперсности увеличивается содержание Fe_2O_3 .

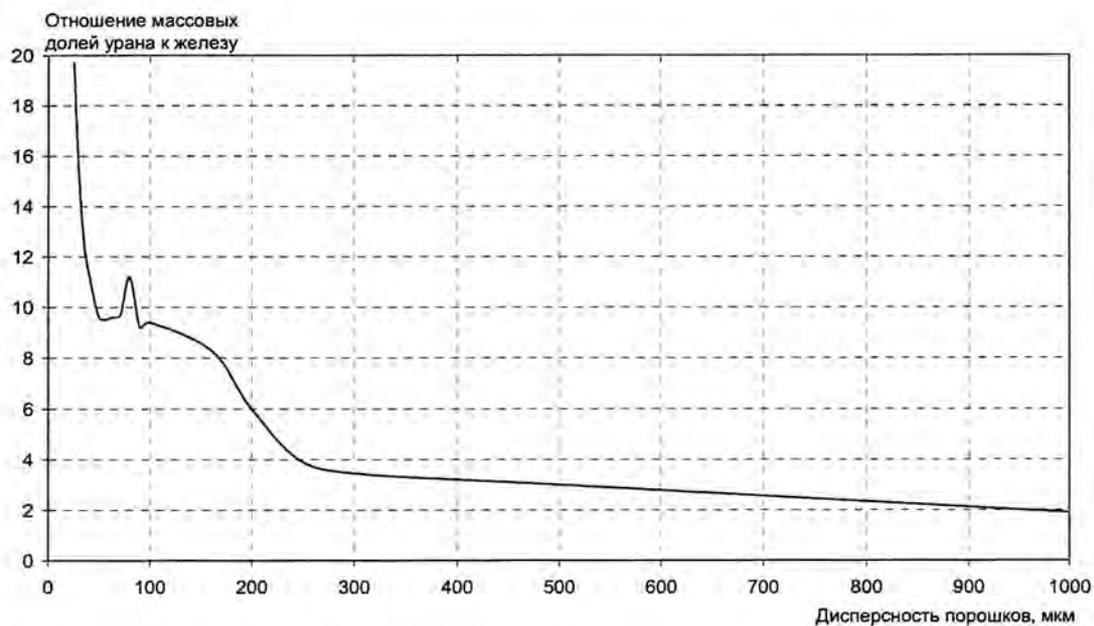


Рис. 4. Отношение массовых долей урана к железу в зависимости от дисперсности порошков

Заключение

В результате высокотемпературного воздействия на объекты, содержащие уран, образуются остатки в виде двух компонентов: порошкообразного вещества и твердого монолитного вещества.

Содержание порошкообразного вещества с размерами частиц менее 2 мм в остатке может составлять 55–60 %. Введение конструкционного материала, например стали, в контакт с ураном приводит к снижению содержания порошкообразного вещества в остатке, оно составляет 30–40 %.

Анализ дисперсности порошка свидетельствует, что в опытах с открытым ураном образовалось больше частиц респираторной фракции (менее 10 мкм), чем в опытах с ураном, находящимся в контакте со стальным бьюксом. Респираторная фракция составляет соответственно 1,7 % и 0,6 % от общей массы частиц порошка.

В опыте с открытым ураном порошок состоит из урана, находящегося в окисленном состоянии, в основном в фазе U_3O_8 с примесью UO_2 .

В случае с ураном, находящимся в стальном бьюксе, установлена зависимость содержания урана и железа от дисперсности порошков, причем с возрастанием дисперсности увеличивается массовая доля урана и уменьшается массовая доля железа. Основу порошка составляет фаза U_3O_8 , в качестве примесей присутствуют фазы Fe_2O_3 и UO_2 , причем со снижением дисперсности увеличивается содержание Fe_2O_3 . Изменение соотношения урана к железу составляет от 2,5 в исходном состоянии до 20 при дисперсности порошка менее 25 мкм.

Среди частиц продуктов сгорания можно выделить большинство типовых форм, характерных для порошкообразных материалов. Имеются частицы округлой формы, угловатые с наличием криволинейных поверхностей, угловатые с наличием острых углов и плоских граней, стержневой формы, игольчатые, пластинчатые округлой и угловатой формы.

В обоих случаях частицы порошка имеют развитую структуру трещин. При механических воздействиях или попадании в жидкую среду частицы легко разрушаются, образуя еще более мелкий спектр частиц. Подобное свойство порошкообразных остатков необходимо учитывать при разработке способов пожаротушения и проведении работ, связанных с ликвидацией последствий аварий.

Полученные результаты исследований показывают, что введение конструкционного материала в контакт с ураном при высокотемпературном воздействии приводит к снижению количества образующегося порошкообразного вещества в остатках, а также доли частиц респираторной фракции, что может найти практическое применение при конструировании объектов, содержащих уран, и устройств для их перевозки и хранения.

Список литературы

1. Сокурский Ю. Н., Стерлин Я. Н., Федоренко В. А. Уран и его сплавы. М.: Атомиздат, 1971.
2. Афанасьев В. А., Беловодский Л. Ф., Тагиров Р. М. Порошкообразование урана при высокотемпературных воздействиях. Международная конференция "Радиоактивность при ядерных взрывах и авариях". Москва, 2000.

Dispersiveness and Chemical Composition of the Powders, Forming Under High-Temperature Effect on Uranium- Containing Objects

A. A. Aushev, V. A. Afanasiev, L. F. Belovodsky, A. N. Gevlich,
A. V. Komissarov, N. M. Kreknina, A. S. Mityashin, V. N. Popov, P. M. Tagirov

The paper presents the results of studies aimed at specification of dispersiveness and chemical composition of powdery combustion products, forming under high-temperature effect on uranium-containing objects. The data on the quantitative and qualitative composition of the powder material are the determinant parameters for estimation of the scale of accidents and serve for development of the methods for elimination of their consequences.