

文章编号 : 0253-9950(2005)0024-03

氦对不饱和氦化铀吸氦行为的影响

蔚勇军, 石 岩, 常元庆

中国工程物理研究院, 四川 绵阳 621900

摘要: 研究了不同含氦量的混合气体、吸氦初始压力以及不同组成的不饱和氦化铀对铀吸氦行为的影响。结果表明, 氦含量的增加会显著减少铀的吸氦量, 降低铀的吸氦速率; 增加混合气体的初始压力有利于铀吸氦速率的增加, 氦化铀的初始氦量不影响铀的吸氦速率。

关键词: 氦; 吸氦; 铀

中图分类号: O561.4 文献标识码: A

金属氢化物作为一种新型的功能材料, 已广泛应用于工业生产与科学研究, 如铀、钍、钷、镭、镧-铝合金等可用于氢同位素气体的纯化、泵输和压缩等^[1-3]。金属铀具有较好的贮氢性能, 常用作贮氦材料。由于氦是一种放射性核素, 因此在贮存过程中会不断衰变生成气体氦-3, 富集在氦化铀表面, 形成氦屏蔽层, 导致氦量降低, 铀贮氢性能下降, 即使再次补氦, 其氦量也难以达到初始值。为了解贮氦过程中衰变氦对氦化铀的屏蔽效应, 本实验将不饱和氦化铀置于不同组分的氦-氦混合气体中, 以模拟氦屏蔽效应对氦化铀吸氦性能的影响。

1 实验部分

1.1 材料和仪器

D₂, ⁴He, 宜宾核燃料元件厂, 纯度均大于 99.99%; D₂-⁴He 混合气体, 往氦中加入一定量的氦气制备而成; 铀床装铀量为 100 g, 经高温除气活化后, 预先吸入一定量的氦气, 使 UD_x 的 x 值达到预定的初始值, 即 x₀。

GC-7A G 气相色谱仪, 日本岛津产品。所有气体样品的分析均采用气相色谱仪测定。

1.2 实验原理与方法

氦化铀吸氦原理如下:



式中, $x = x_0 + 2n'$ 。 (1)

在反应的初始阶段, 铀氦反应可视为零级反

应^[4,5]。因此, 系统中氦分压变化有如下关系式:

$$\frac{dp}{dt} = -k,$$

积分可得: $p = p_0 - kt$ 。 (2)

p_0 为系统中氦的初始分压。

根据理想气体状态方程:

$$p_0 V_0 = n_0 RT$$
。 (3)

则

$$pV = nRT$$
。 (4)

式中, $V_0 = V$, n_0 和 n 分别为系统中氦的初始量(摩尔)和 t 时间的量(摩尔)。由式(3), (4)可得:

$$\frac{n}{n_0} = \frac{p}{p_0}$$
。 (5)

所以, 根据式(2), (3)可得:

$$n = n_0 - V_0 kt / RT$$
。 (6)

令 $V_0 kt / RT = n'$, 即 $n = n_0 - n'$ 。

因此, 根据式(1), (6)可得到如下关系式:

$$x = x_0 + \frac{2V_0 k}{RT} t$$
。 (7)

式中, V_0 , k , T 分别为铀氦反应体系的气体体积、反应的速率常数、反应体系的温度。令 $2V_0 k / RT = K$ (K 为铀床的吸氦速率), 则 $x = x_0 + Kt$ 。在不考虑反应过程中温度以及反应过程中体系温度和体积的变化情况下, $x-t$ 呈线性关系。

实验装置如图 1 所示。将精确配置的氦-氦混合气体注入贮气罐内, 达到预定压力后, 将贮气罐与不饱和的铀氦化学床对接。系统经真空检漏合格后, 打开贮气罐与化学床之间阀门, 开始吸

收稿日期: 2004-06-10; 修订日期: 2004-09-10

作者简介: 蔚勇军(1964—), 男, 山西平遥人, 工程师, 从事氢同位素的相关技术研究。

气,同时记录时间。反应过程中定期对贮气罐中的气体进行取样分析,计算化学床内 UD_x 的 x 值。所有吸气反应均在室温下进行。

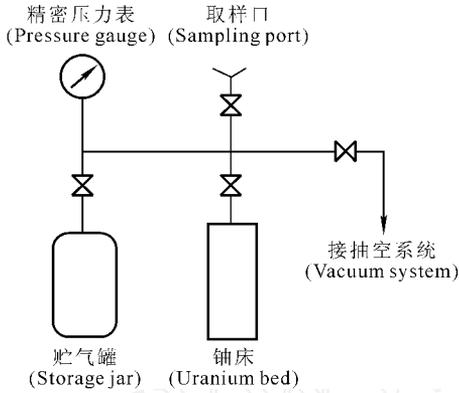


图 1 实验装置图

Fig. 1 Schematic of the measurement device

2 结果和讨论

2.1 氦质量分数对贮气铀床吸气行为的影响

在铀氘化合物为 $UD_{2.4}$, 氦氘混合气体的初始压力为 0.3 MPa 条件下,分别考察了铀床对氦质量分数为 10.49%, 31.80%, 53.59% 和 74.14% 时,氦氘混合气体的吸气行为, UD_x 中 x 对铀床吸气时间作图,结果示于图 2。从图 2 看出,混合气中氦的质量分数较大程度上影响了铀

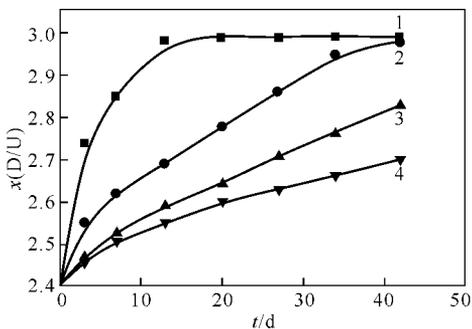


图 2 在 0.3 MPa 下,不同氦质量分数对 $UD_{2.4}$ 吸气行为的影响

Fig. 2 Influence of absorbing deuterium in the UD-bed on different mass fraction of helium at 0.3 MPa
 $w(\text{He})$: 1—10.49%, 2—31.80%, 3—53.59%, 4—74.14%

床的吸气量。在氦质量分数较低的情况下,铀床吸气可以达到饱和, x 值可以达到 3.0;随着氦质量分数的不断增加,铀床吸气量下降。从图 2 还可以看出,在铀床吸气的初始阶段, x 与时间 t 呈近似的线性关系,这与铀氘反应的理论计算一致,铀床的吸气速率随着氦质量分数的增加而降低。

铀床吸气 49 d 后,分别对化学床和贮气罐内气体组分进行分析,结果列入表 1。从表 1 看出,低浓度氦混合气体与高浓度氦混合气体组分不一致。低浓度氦混合气体化学床和贮气罐内的组分基本相同,而高浓度氦混合气体化学床内的氦浓度明显高于贮气罐。

表 1 化学床与贮气罐中的氦质量分数

Table 1 Mass fraction of helium in the UD-bed and the ballast

$w_0 / \%$	$w(\text{U-bed}) / \%$	$w(\text{Ballast}) / \%$
10.49	13.48	13.16
31.80	39.86	39.37
53.59	99.92	65.38
74.14	99.97	81.84

实验结果表明,导致铀床吸气量下降原因是铀床在吸气过程中,铀床腔体内氘气不断被吸收的同时,氦在铀床的表面不断聚集浓缩,形成了阻氦氘屏蔽层,氦屏蔽效应的形成大大降低了铀床的吸气量。氦质量分数越高,氦屏蔽效应越容易形成。

2.2 混合气体压力对铀床吸气行为的影响

当混合气体中氦的质量分数为 50%,初始压力分别为 0.2, 0.4 MPa 时, $x-t$ 曲线示于图 3。从图 3 可以看出,增加混合气体的初始压力能够提高铀床的吸气速率。

2.3 氘化铀初始 x_0 值对吸气行为的影响

在初始压力 0.3 MPa 下,考察了氘化铀 x_0 为 1.8 和 2.6 对氦质量分数为 50% 的混合气体吸气情况,结果示于图 4。从图 4 可以看出,两条直线近似平行。因此可以认为,不饱和氘化铀吸气速率(K)相同,吸气速率 K 与 x_0 无关。

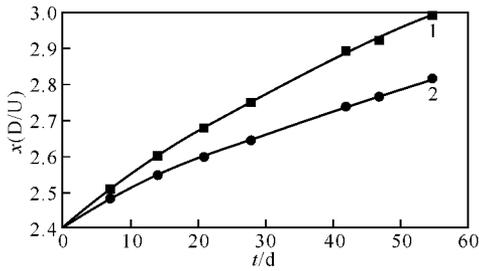


图 3 不同初始压力对 $UD_{2.4}$ 吸气行为的影响

Fig. 3 Influence of different initial pressure on absorbing deuterium in $UD_{2.4}$
 p_0 : 1 — 0.4 MPa, 2 — 0.2 MPa

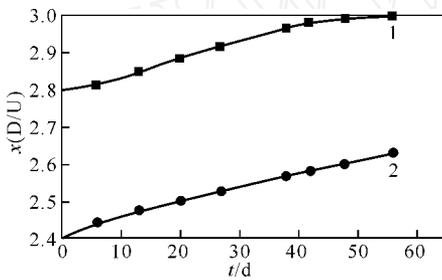


图 4 在 0.3 MPa 下,不同初始 x_0 值对 UD_x 吸气行为的影响

Fig. 4 Influence of different x_0 in UD_x on absorbing deuterium at 0.3 MPa
 x_0 : 1 — 2.6; 2 — 1.8

3 结 论

室温下含氦质量分数不同的混合气体和吸气初始压力对铀吸气行为的影响较大,氦质量分数的增加会降低铀的吸气量和铀的吸气速率;增加混合气体的初始压力有利于吸气速率的增加,但铀化合物的初始组成 x_0 值不影响铀床的吸气速率。

参考文献:

- [1] 大角泰章. 金属氢化物的性质与应用[M]. 吴文宽等译. 北京:化学工业出版社,1990. 11~19.
- [2] Bowman R C. Removal of Tritium From Aged La-Ni-Al and Pd Metal Tritides [J]. Phys Rev, 1997, 16:1 828~1 832.
- [3] Walters R T. Helium Dynamics in Metal Tritides . The Effect of Helium From Tritium Decay on the Desorption Plateau Pressure for La-Ni-Al Tritides [R]: DP-MS-88-140. Las Vegas: Annual TMS AIME Meeting, 1989. 1~10.
- [4] Stakebake T L. Kinetics for the Reaction of Hydrogen with Uranium Powder[J]. J Electrochem Soc, 1979, 126:1 596~1 601.
- [5] Condon J B, Larson E A. Kinetics of the Uranium-Hydrogen System[J]. J Chem Phys, 1973, 59:855~865.

Influence of Helium on Deuterium Absorption by Unsaturated Uranium Deuteride

WEI Yong-jun, SHI Yan, CHANG Yuan-qing

China Academy of Engineering and Physics, P. O. Box 919(71), Mianyang 621900, China

Abstract: Deuterium containing helium absorption of unsaturated uranium deuteride with different composition at varied initial pressure is studied. Results show that deuterium absorption quantity and velocity decrease with helium content increase. Absorption velocity increases with initial pressure, and keeps constant at different initial composition of uranium deuteride.

Key words: helium; deuterium absorption; uranium