

Диаграммы плавкости систем, содержащих хлорид лития, три- и тетрахлорид урана

В. В. ДЕСЯТНИК, Н. И. КУРБАТОВ, С. П. РАСПОПИН, И. И. ТРИФОНОВ

УДК. 546.791.6:131.34

Использование расплавленных солей в качестве электролитов при получении металлов электролизом связано с необходимостью изучения диаграмм плавкости как двойных, так и тройных систем. В настоящей работе излагаются результаты исследования двойных и тройных систем, содержащих хлориды трех- и четырехвалентного урана и хлорид лития.

Двойные системы $\text{LiCl}-\text{UCl}_3$ и $\text{LiCl}-\text{UCl}_4$ были изучены ранее [1]. Однако при проверке были обнаружены некоторые расхождения опубликованных данных с результатами исследований. Диаграмма состояния двойной системы $\text{UCl}_3-\text{UCl}_4$ построена ранее [2].

Для проведения эксперимента были приготовлены [3, 4] чистые исходные вещества. Тетрахлорид урана имел атомное отношение $[\text{Cl}]:[\text{U}] = 4,01$ и температуру плавления $590 \pm 2^\circ\text{C}$. Трихлорид урана, изготовленный из полученного тетрахлорида [3], имел атомное отношение $[\text{Cl}]:[\text{U}] = 3,02$ и температуру плавления $835 \pm 2^\circ\text{C}$. Безводный LiCl получали обезвоживанием хлористого лития марки ОСЧ в вакууме при температурах 50, 100 и 300°C с выдержкой 4–5 ч при каждой

температуре. После выдержки хлористый литий нагревали до 750°C и через расплав пропускали газообразный хлор, полученный электролизом хлористого свинца, в течение 30–60 мин. После пропускания хлора расплав вакуумировали в течение 2 ч при медленном охлаждении. Полученный таким образом LiCl анализировали на содержание хлора и лития, которое в пределах ошибки оказалось стехиометрическим. Температура плавления такого LiCl составляла $605 \pm 2^\circ\text{C}$, что хорошо согласуется с опубликованным значением [5].

Исходные материалы вследствие их высокой гигроскопичности хранили в сухой камере.

Двойные и тройные системы изучали методом дифференциального термического анализа с записью кривых охлаждения со скоростью 5–8 град/мин на приборе НТР-62М.

Построенная по результатам исследований двойная система $\text{LiCl}-\text{UCl}_3$ характеризуется одной эвтектикой с температурой плавления $490 \pm 2^\circ\text{C}$ при 26,5 мол. % UCl_3 (см. рисунок), что хорошо согласуется с результатами работы [1]. В бинарной системе $\text{LiCl}-\text{UCl}_4$

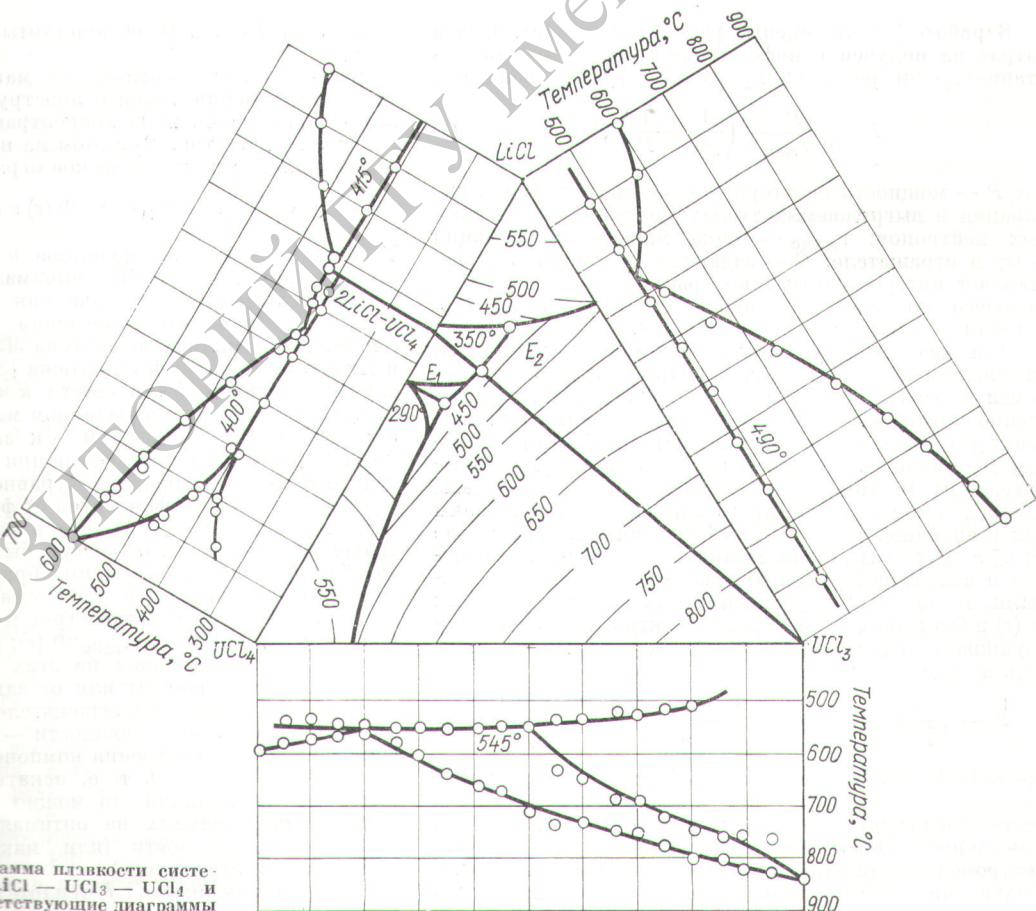


Диаграмма плавкости системы $\text{LiCl}-\text{UCl}_3-\text{UCl}_4$ и соответствующие диаграммы состояния двойных систем.

обнаружены две эвтектики при содержании UCl_4 31,00 и 44,00 мол. %, имеющие температуры плавления 415 ± 2 и $400 \pm 2^\circ\text{C}$ соответственно, и соединение $2\text{LiCl}\cdot\text{UCl}_4$, плавящееся конгруэнтно при $430 \pm 2^\circ\text{C}$. В отличие от данных работы [1], в которой не изучалась область $75-100$ мол.% UCl_4 , нами установлено существование твердого раствора $\text{UCl}_4-\text{UCl}_3$. В тройной системе $\text{LiCl}-\text{UCl}_3-\text{UCl}_4$ (см. рисунок) изучено десять полигермических разрезов, проходящих через вершину концентрационного треугольника (соответствующего составу LiCl) и противоположную сторону. В этой системе определены четыре поля кристаллизации: UCl_4 , $2\text{LiCl}\cdot\text{UCl}_4$, LiCl и UCl_3 . Квазибинарное сечение $\text{UCl}_3-2\text{LiCl}\cdot\text{UCl}_4$ делит систему на две вторичные простые эвтектические системы. Эвтектическая точка (E_1), образованная полями кристаллизации UCl_4 , $2\text{LiCl}\cdot\text{UCl}_4$ и UCl_3 , характеризуется температурой плавления $290 \pm 2^\circ\text{C}$ и соответствует составу (в мол. %): 50,00 LiCl , 10,00 UCl_3 и 40,00 UCl_4 . Поля кристаллизации $2\text{LiCl}\cdot\text{UCl}_4$,

LiCl и UCl_3 сходятся, образуя эвтектику (E_2) с температурой плавления $350 \pm 2^\circ\text{C}$, соответствующую составу (в мол. %): 68,00 LiCl , 13,00 UCl_3 и 19,00 UCl_4 .

Поступило в Редакцию 9/VI 1971 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Reactor Handbook. Vol. 1, Materials. New York, 1960, p. 425.
2. В. Н. Десятник и др. «Атомная энергия», 26, 549 (1969).
3. Дж. Кац, Е. Рабинович. Химия урана. Т. I. М., Изд-во иностр. лит., 1954.
4. В. Н. Десятник, И. Ф. Ничков, С. П. Распопин. «Изв. вузов. Цветная металлургия», № 5, 95 (1969).
5. Справочник по расплавленным солям. Пер. с англ. Под ред. А. Г. Морачевского. М., «Химия», 1971.

Об оптимизации реактора для физических исследований профилированием горючего

Т. С. ЗАРИЦКАЯ, Ю. В. ПЕТРОВ, А. П. РУДИК, Э. Г. САХНОВСКИЙ

УДК 621.039.51

В работе [1] для оценки реакторной составляющей затрат на получение информации в экспериментах на стационарном реакторе предложен функционал вида

$$I = \frac{P}{\Phi(r_{\max})} \left(\frac{1}{yG} + \frac{1}{P} \right), \quad (1)$$

где P — мощность реактора; y — средняя глубина выгорания в выгружаемых твэлах; $\Phi(r)$ — поток тепловых нейтронов; r_{\max} — точка максимума функции $\Phi(r)$ в отражателе; G — заданная постоянная. Представляет интерес найти такое распределение ядерного горючего по объему активной зоны реактора, при котором функционал (1) минимален.

Для качественного исследования решения задачи рассмотрим ее простейшую модель. При этом ограничимся случаем, когда неравномерность выгорания можно пренебречь. Выберем плоский симметричный реактор с активной зоной полусотни R и отражателем толщиной Δ . Предположим, что конструкционные материалы (в том числе замедлитель) распределены однородно по объему реактора и их свойства неизменны как в активной зоне ($0 \leq r \leq R$), так и в отражателе ($R \leq r \leq R + \Delta$). Если считать резонансное поглощение и захват нейтронов при замедлении несущественными, тогда систему уравнений для потоков тепловых $\Phi(r)$ и быстрых $\varphi(r)$ нейтронов в активной зоне в двухгрупповом диффузационном приближении можно записать в виде

$$\frac{\Phi - 1 + u}{L_0^2} \Phi + \frac{D}{\tau} \varphi = 0, \quad \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{\tau} \varphi + \frac{\eta u}{DL_0^2} \Phi \right) = 0, \quad (2)$$

где $D = D_b/D_t$ — отношение коэффициентов диффузии быстрой и тепловой групп; L_0 — длина диффузии без учета поглощения в уране; τ , η — квадрат длины замедления и эффективное число рождающихся быстрых нейтронов на один акт захвата в уране соответственно. Уравнения для потоков нейтронов в отражателе можно получить из системы (2), если принять в ней $u \equiv 0$

и заменить L_0 , τ и D на константы отражателя L_* , τ_* и D_* .

Функция $u(r)$ — отношение макроскопических сечений поглощения урана и конструкционных материалов — пропорциональна концентрации урана, которая заранее не известна. При этом на нее наложены технологическое и теплотехническое ограничения:

$$0 \leq u(r) \leq U_{\max}; \quad \Phi(r)u(r) \leq q_{\max}. \quad (3)$$

Требуется определить функцию $u(r)$ таким образом, чтобы функционал (1) был минимальным.

Сформулированная задача как неклассическая задача вариационного исчисления была исследована с помощью принципа максимума Л. С. Понтрягина [2] и методом множителей Лагранжа [3], причем в первом случае ее удобно было свести к задаче о минимуме мощности реактора при заданном максимальном потоке в отражателе, а во втором — к задаче о максимуме потока нейтронов в отражателе при заданной мощности реактора. В силу линейности уравнений (2) и линейной зависимости их коэффициентов от функции управления нетрудно показать [4, 5], что в качестве допустимых значений функции $u(r)$ могут быть только границы ее области изменения. Таким образом, активная зона реактора, оптимального в рассматриваемом смысле, может состоять из участков трех и только трех типов: $u(r) = U_{\max}$; $u(r) = q_{\max}/\Phi(r)$; $u(r) = 0$. При этом оптимальная компоновка из этих участков активной зоны, очевидно, зависит или от заданного максимального потока нейтронов в отражателе при первом подходе, или от заданной мощности — при втором. Если исключить из рассмотрения компоновки активной зоны с участками $u(r) = 0$, т. е. искать решение в классе непрерывных функций, то можно проследить зависимость подозрительных на оптимальность компоновок от заданной мощности (или максимального потока нейтронов в отражателе).

На малых мощностях P теплотехническое ограничение будет выполняться всюду в $[0, R]$, и оптимальной