

отклонения изотерм σ , G^s и H^s от линейности [7]. Это подтверждается и отрицательными отклонениями (24,6% в системе $RbCl - UCl_3$ и 31,4% в $CsCl - UCl_3$) поверхностного натяжения эквимольного состава от идеальных, вычисленных по уравнению Жуховицкого — Гуттенгейма [8].

Максимальное отклонение мольных объемов от аддитивности наблюдается в области концентрации, соответствующей конгруэнтно плавящемуся соединению Me_2UCl_5 [1], что связано, по-видимому, с образованием в расплаве комплексных группировок урана UCl_5^{2-} . Это отклонение возрастает при переходе от системы $NaCl - UCl_3$ (5,13% [3]) к системам $RbCl - UCl_3$ (9,50%) и $CsCl - UCl_3$ (10,97%), что указывает на усиление взаимодействия трихлорида урана с хлоридами щелочных металлов по мере роста радиуса катиона щелочного металла.

На изотермах σ в области 25—50 мол.% UCl_3 проявляется минимум, связанный с образованием комплексных соединений урана, поверхностно-активных по отношению к обоим компонентам смеси [9]. Адсорбция ионов в поверхностном слое в области концентрации, отвечающей соединениям Me_2UCl_5 , равна нулю, а на кривых S^s проявляются максимумы. Это свидетельствует об устойчивости образующихся при смешении компонентов комплексных ионов UCl_5^{2-} в расплавах обеих систем, которые, по-видимому, и являются поверхностно-активными.

Дополнительные сведения об изменении структуры смесей позволяют изучить концентрационную зависимость μ и энергию активации вязкого течения. Так, в области концентрации 0—50 мол.% UCl_3 в качестве структурных единиц, участвующих в вязком течении, выступают элементарные катионы рубидия и цезия, комплексные ионы UCl_5^{2-} , и в незначительном количестве ионы UCl_3^{3-} , $RbCl_4^{3-}$, $CsCl_4^{3-}$ [10]. По мере возрастания концентрации трихлорида урана комплексные ионы $RbCl_4^{3-}$ и $CsCl_4^{3-}$ разрушаются. Вязкость расплава здесь меняется незначительно, главным образом

в результате уменьшения числа легче смещаемых катионов рубидия и цезия. В расплавах, содержащих более 50 мол.% UCl_3 , повышение вязкости вызвано появлением во второй координационной сфере комплексных катионов урана типа UCl_4^+ . Изменение ее значения и энергии активации вязкого течения в расплавах, содержащих более 80—90 мол.% UCl_3 , указывают на происходящий процесс распада сложных комплексных группировок урана на более простые.

Поступило в Редакцию 21/VI 1976 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Десятник В. Н., Дубинин Б. В., Распопин С. П. «Журн. физ. химии», 1973, т. 47, № 10, с. 2726.
2. Вохмяков А. М. и др. Физико-химические исследования металлургических процессов. Вып. 2. Свердловск, изд. УПИ им. С. М. Кирова, 1974, с. 70.
3. Десятник В. Н. и др. «Атомная энергия», 1975, т. 39, вып. 1, с. 70.
4. Справочник по расплавленным солям. Пер. с англ. Под ред. А. Г. Морачевского. Т. 1. Л., «Химия», 1971.
5. Справочник по расплавленным солям. Пер. с англ. Под ред. А. Г. Морачевского. Т. 2. Л., «Химия», 1972.
6. Марков Б. Ф. Термодинамика расплавленных солевых смесей. Киев, «Наукова думка», 1974.
7. Смирнов М. В., Степанов В. П. В сб.: Тр. Института электрохимии УФАН СССР. Вып. 16. Свердловск, 1970, с. 21.
8. Boardman N., Palmer A., Neymann E. «Trans. Faraday Soc.», 1955, v. 51, N 2, p. 277.
9. Есин О. А. В сб.: Строение вещества и спектроскопия. М., Изд-во АН СССР, 1960, с. 111.
10. Смирнов М. В. Электродные потенциалы в расплавленных хлоридах. М., «Наука», 1973, с. 201.

УДК 621.039.548.004.4 : 621.039.526

Некоторые закономерности выхода короткоживущих продуктов деления в натриевый теплоноситель

ЕФИМОВ И. А., ЛОПАТИН Ю. В., МАМАЕВ Л. И., СТАБРОВСКИЙ С. А., ФИЛОНОВ В. С.

В быстрых реакторах с натриевым теплоносителем широко используется контроль герметичности твэлов по запаздывающим нейтронам [1, 2]. Чтобы полнее оценить возможности аппаратуры, необходимо уточнить механизм утечки регистрируемых продуктов деления в теплоноситель.

Опытами на реакторе БР-5 установлено, что даже при герметичности твэлов поведение утечек невозможно объяснить простейшим механизмом прямого вылета осколков деления в теплоноситель. В частности, существование температурных зависимостей показаний аппаратуры контроля герметичности твэлов [3] не объяснено. Теоретическая обработка данных работы [3] выявила существование экспоненциальной зависимости утечки от температуры. Это можно объяснить влиянием диффузионных процессов на утечку, причем низкая энергия активации этих процессов (14 кДж/моль для изотопов, испускающих запаздывающие нейтроны, и 27 кДж/моль для инертных газов) указывала на диффузию в жидкости.

Рис. 1 иллюстрирует другой эксперимент на БР-5 — изучение поведения аппаратуры контроля по запаздывающим нейтронам при колебании мощности реактора, откуда следует, что относительные колебания показаний аппаратуры в 2,3 раза превышают относительные колебания мощности. При обработке этого результата с позиции диффузионной утечки получен коэффициент диффузии для продуктов деления, равный $\sim 10^{-10}$ м²/с. Такое высокое значение коэффициента диффузии также характерно для процессов в жидкостях.

Для объяснения полученных результатов на реакторе БР-10 были проведены специальные эксперименты при отсутствии негерметичных твэлов — записывались показания аппаратуры контроля по запаздывающим нейтронам при изменении температуры и расхода теплоносителя (рис. 2). Обработка результатов экспериментов показала, что все наблюдавшиеся эффекты можно объяснить влиянием вязкого подслоя турбулентного потока натрия вблизи стенок. Поскольку толщина подслоя соизмерима с величиной пробега осколков в тепло-

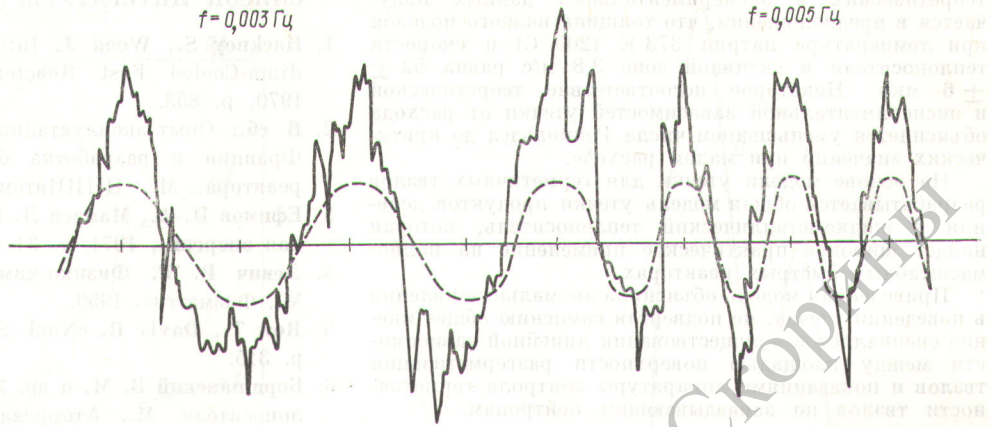


Рис. 1. Колебания показаний аппаратуры контроля герметичности твэлов по запаздывающим нейтронам при осцилляции мощности

носителя, выход продуктов деления в основной поток может осуществляться прямым вылетом через подслое и диффузией в подслое. Изменение коэффициента диффузии и толщины подслоя должны определять зависимость утечки от параметров теплоносителя.

Были проведены расчеты по специальным одномерным дифференциальным уравнениям диффузии, в которых наряду с прямым вылетом и диффузией в подслое учитывался естественный распад изотопов. Краевые условия отражали низкую концентрацию осколков в турбулентном подслое и малую вероятность атома сорбироваться на стенке за одно соударение. При рас-

чете полагали, что толщина вязкого подслоя прямо пропорциональна вязкости и обратно пропорциональна усредненной линейной скорости теплоносителя [4]; данные для вычисления температурной зависимости коэффициента диффузии (энергия активации 22 кДж/моль) взяты из работы [5], а температурные зависимости для вязкости и плотности натрия — из [6]. Расчеты велись на ЭВМ. На рис. 2 представлены результаты этих расчетов для реактора БР-10, причем за источник продуктов деления принимался «толстый» слой (в масштабе пробега) смеси урана со шламмом, осевший на стенки активной зоны. Хорошее совпадение

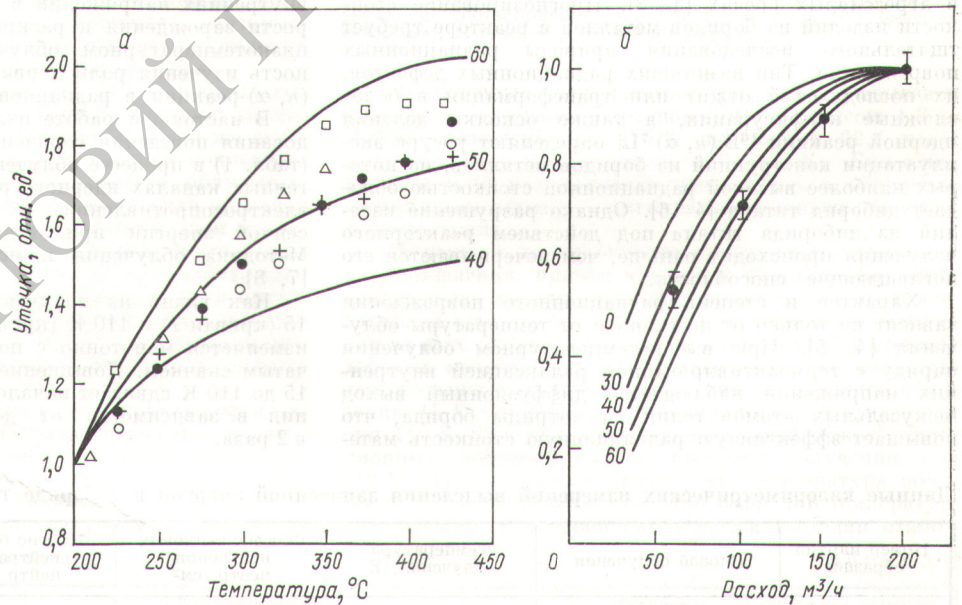


Рис. 2. Сопоставление теоретических расчетов зависимостей выхода продуктов деления, испускающих запаздывающие нейтроны, от температуры (а) и расхода (б) теплоносителя с экспериментальными данными аппаратуры контроля по запаздывающим нейтронам реактора БР-10 при отсутствии негерметичных твэлов:

△, □ — 24, 26/XII 1974 г. соответственно; +, ●, ○ — 14/II 1975 г. Цифры у кривых — толщина вязкого подслоя (мм) при 373 К и скорости теплоносителя 3,8 м/с

теоретических и экспериментальных данных получается в предположении, что толщина вязкого подслоя при температуре натрия 373 К (200 °С) и скорости теплоносителя в активной зоне 3,8 м/с равна 52 ± 6 мкм. Некоторое несоответствие теоретической и экспериментальной зависимостей утечки от расхода объясняется уменьшением числа Рейнольдса до критических значений при малом расходе.

На основе модели утечки для герметичных твэлов разрабатывается общая модель утечки продуктов деления в жидкометаллический теплоноситель, которая найдет широкое практическое применение на полномасштабных быстрых реакторах.

Приведенная модель объяснила аномальные явления в поведении утечек, не подвергая сомнению общее мнение специалистов о существовании линейной зависимости между площадью поверхности разгерметизации твэлов и показаниями аппаратуры контроля герметичности твэлов по запаздывающим нейтронам.

Поступило в Редакцию 21/VI 1976 г.

УДК 154—162 : 539.16.04

Исследование электросопротивления и запасенной энергии при низкотемпературном облучении диборида титана

ТОПЧЯН Л. С., НАСКИДАШВИЛИ И. А., ОГОРОДНИКОВ В. В., ПЕТРОСЯН В. В., МУРЗИН Л. М.

Бориды металлов являются эффективными поглотителями, а также обладают высокой температурой плавления, высокой твердостью и химической стойкостью в агрессивных средах [1—3]. Прогнозирование стойкости изделий из боридов металлов в реакторе требует тщательного исследования природы радиационных повреждений. Тип возникших радиационных дефектов, их последующий отжиг или трансформация в более сложные конфигурации, а также осколки деления ядерной реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ определяют ресурс эксплуатации конструкций из боридов металлов, из которых наиболее высокой радиационной стойкостью обладает диборид титана [4—6]. Однако разрушение изделий из диборида титана под действием реакторного излучения происходит раньше, чем исчерпываются его поглощающие способности.

Характер и степень радиационного повреждения зависят не только от дозы, но и от температуры облучения [4, 5]. При высокотемпературном облучении наряду с термоактивированной релаксацией внутренних напряжений наблюдается диффузионный выход междузельных атомов гелия из матрицы борида, что повышает эффективную радиационную стойкость мате-

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Hackney S., Wood J. In: Proc. Symp. IAEA «Sodium-Cooled Fast Reactor Engineering», Vienna, 1970, p. 853.
2. В сб.: Опыт эксплуатации быстрых реакторов во Франции и разработка быстрого промышленного реактора. М., ЦНИИАтоминформ, 1975, с. 35.
3. Ефимов И. А., Мамаев Л. И., Филонов В. С. «Атомная энергия», 1971, т. 31, вып. 6, с. 567.
4. Левич В. Г. Физико-химическая гидродинамика. М., Физматгиз, 1959.
5. Row T., Davis R. «Nucl. Safety», 1970, v. 11, N 4, p. 315.
6. Боршанский В. М. и др. Жидкометаллические теплоносители. М., Атомиздат, 1967.

риала. Понижение температуры облучения, исключаящее частичный отжиг дефектов и способствующее их накоплению, должно приводить к существенному росту внутренних напряжений в решетке и увеличению скорости зарождения и раскрытия трещин. Поэтому при низкотемпературном облучении появляется возможность изучения роли первичных дефектов и продуктов (n, α)-реакции в радиационном повреждении боридов.

В настоящей работе излагаются результаты исследования поведения горячепрессованных образцов TiB₂ (табл. 1) в процессе облучения при 15 и 110 К в криогенных каналах ядерного реактора методом измерения электросопротивления, а также определением запасенной энергии при отжиге облученных образцов. Методика облучения и исследований описана ранее [7, 8].

Как видно из полученных данных (рис. 1), при 15 (кривая 1) и 110 К (кривая 2) электросопротивление изменяется монотонно с последующим резким ступенчатым скачком. Повышение температуры облучения от 15 до 110 К сдвигает начало скачка электросопротивления в зависимости от дозы облучения более чем в 2 раза.

Данные калориметрических измерений выделения запасенной энергии в дибориде титана

Таблица 1

Номер партии образцов	Способ облучения	Температура облучения, К	Флюенс тепловых нейтронов, нейтр./см ²	Флюенс быстрых нейтронов, нейтр./см ²	Общее тепловыделение, кал/г
I	Без экрана	115	$1,2 \cdot 10^{18}$	$1,2 \cdot 10^{18}$	22,7—0,5
II	Без экрана	130	$1,4 \cdot 10^{17}$	$1,5 \cdot 10^{17}$	7,0—0,3
III	С кадмиевым экраном	130	—	$1,5 \cdot 10^{17}$	1,4—0,1