

ной защите железо — вода. Учет нерассеянного излучения существенно сказывается на распределении нейтронов в воде, что связано в основном с изменением спектра пропущенных железом нейтронов резонансных энергий. На выходе из этой системы расхождение в сравниваемых потоках нейтронов составляет ~ 2 раза для обоих источников.

Особое значение имеет корректный учет нерассеянного излучения в малогрупповых расчетах, когда среда защиты состоит из элементов с монотонно изменяющимися сечениями, так как в этом случае эффект самоэкранировки сечений возрастает с увеличением энергетического интервала группы. Например, пропускание быстрых нейтронов спектра деления с энергией $E > 0,8$ МэВ слоем воды толщиной 80 см, рассчитанное в одногрупповом приближении, примерно в 10^3 раз меньше, чем аналогичное пропускание, рассчитанное в пятигрупповом приближении. В таких случаях существенное значение имеет также и учет корреляции сече-

ний повторяющихся элементов в отдельных слоях защиты.

Поступила в Редакцию 23/III 1977 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Абагян Л. П. и др. III Женевск. конф., 1964. Докл. СССР P/357.
2. Хохлов В. Ф. и др. В кн.: Ядерные константы. Вып. 8, ч. 4. М., изд. ЦНИИатоминформ, 1972, с. 154.
3. Хохлов В. Ф. и др. Там же, ч. 2, с. 119.
4. Филиппов В. В. и др. Англо-советский семинар «Ядерные константы для расчета реакторов». Дубна, 18—22 июня 1968, докл. АСС-68/403.
5. Хохлов В. Ф., Ткачев В. Д. В кн.: Тезисы докладов Всесоюзной научной конференции по защите от ионизирующих излучений ядерно-технических установок. М., изд. МИФИ, 1974, с. 7.
6. Дорофеев А. А. и др. Решение уравнения переноса в задачах о плоскопараллельном слое (программа РОЗ-5). Ч. 1. М., изд. Ин-та прикладн. математики АН СССР, 1972.
7. Казанский Ю. А. и др. Физические исследования защиты реакторов. М., Атомиздат, 1966.

УДК 621.039.544.57

Термодинамическая стабильность мононитрида урана

БАЛАНКИН С. А., ЛОШМАНОВ Л. П., СКОРОВ Д. М., СОКОЛОВ В. С.

Термодинамическая стабильность может ограничивать использование мононитрида урана в качестве ядерного топлива в высокотемпературных реакторах, что связано с изменением состава UN и появлением свободного урана при высокой температуре. Об изменении состава UN свидетельствует уменьшение скорости испарения в процессе изотермических выдержек при 1878 и 1983 К [1]. Сообщается также о наблюдаемых изменениях парциальных давлений азота и урана при испарении UN [2, 3], однако причины этих изменений подробно не обсуждаются. Данные о температуре появления свободного урана в UN весьма разноречивы: 1773 К [4], 1973 К [5], 2073 К [1].

В связи с этим была измерена скорость испарения в диапазоне температур 1758–2168 К. Температуру появления свободного урана определяли путем рентгеновского фазового анализа образцов после экспериментов по испарению. Исходный нитрид урана имел следующий химический состав, мас. %: U — 94,3; N — 5,15; C (общий) — 0,1, C (свободный) — 0,018; O — 0,25, что соответствует формульному составу $U(N_{0,94}C_{0,02}O_{0,04})_{0,99 \pm 0,01}$. Рентгеновский ана-

лиз исходных образцов не показал наличия других фаз, кроме мононитрида урана с периодом решетки $4,890 \pm 0,001$ Å. Исследование скорости испарения проводили в вакууме $1 \cdot 10^{-5}$ мм рт. ст. методом Лэнгмюра в варианте непрерывного взвешивания на высокотемпературной установке с автоматической записью результатов измерения [6]. Погрешность измерения скорости испарения составляла 15%. Образец в форме пластины размером $7 \times 7 \times 1$ мм, подвешенный к кварцевым микровесам на вольфрамовой нити, после установления необходимой температуры опускали в зону нагрева и затем проводили автоматическую запись изменения массы образца. Из рис. 1 следует, что при изотермических выдержках скорость испарения уменьшается, достигая постоянного, неизменного во времени значения. Результаты рентгеновского фазового анализа указывают на присутствие свободного урана в образцах мононитрида урана, выдержанных при 1970 К и выше, что хорошо согласуется с данными работы [5].

Для объяснения полученных результатов на основании статистико-термодинамической тео-

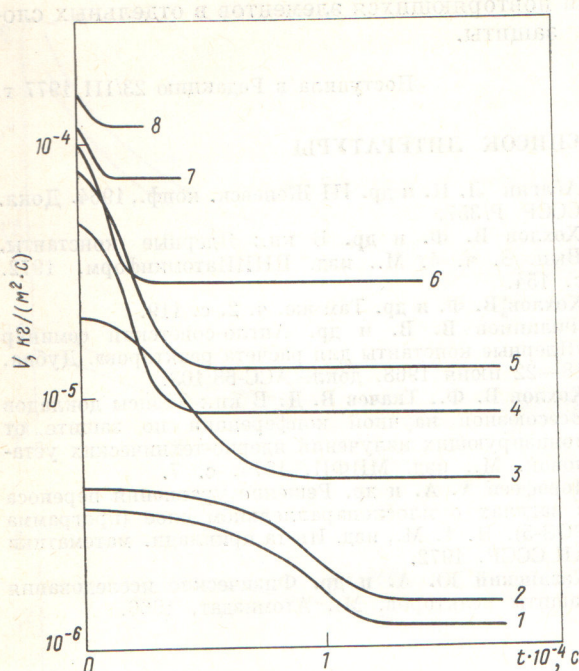


Рис. 1. Зависимость скорости испарения от времени выдержки при различной температуре, К:

1 — 1758; 2 — 1873; 3 — 1938; 4 — 1970; 5 — 2020; 6 — 2073; 7 — 2133; 8 — 2168

рии [7], успешно применявшейся для УС [8], была рассчитана зависимость парциальных давлений урана и азота от температуры и состава монокитрида урана. Согласно работе [7], выражения для парциальных давлений компонентов фазы $A_{1-x}B_x$ имеют вид:

$$\ln \bar{P}_A = \ln P_A^* - (F_A^* + 2RT \ln 2\alpha) / 2RT + \ln \frac{1-2x}{1-x}; \quad (1)$$

$$\ln \bar{P}_B = \ln P_B^* - F_B^* / 2RT + \ln \frac{x}{1-2x}, \quad (2)$$

где P_A^* , P_B^* — давление над чистыми компонентами А и В; F_A^* , F_B^* — свободная энергия образования структурных вакансий компонентов А и В; α — концентрация тепловых вакансий в металлической или неметаллической под решетках.

Зная парциальные давления компонентов над соединением известного состава и давления над чистыми компонентами, по уравнениям (1), (2) можно определить значения F_B^* , $F_A^* + 2RT \ln 2\alpha$, а затем получить выражения для парциальных давлений в области гомогенности соединения.

Подстановка экспериментально найденных парциальных давлений урана и азота над

$UN_{0,99}$ в уравнения (1), (2) с учетом наиболее достоверных значений давления над чистым ураном [9] дает возможность определить искоемые величины:

$$F_U^* + 2RT \ln 2\alpha = 60400 - 80,0T, \text{ Дж/моль}; \quad (3)$$

$$F_{N^*} = 583000 - 99,4T \text{ Дж/моль} \quad (4)$$

и найти температурные зависимости парциальных давлений урана и азота над монокитридом урана различного состава:

$$\lg \bar{P}_U = 12,9 - \frac{26850}{T} + \lg \frac{1-2x}{1-x}, \text{ Н/м}^2; \quad (5)$$

$$\lg \bar{P}_{N_2} = 10,2 - \frac{30460}{T} + 2 \lg \frac{x}{1-2x}, \text{ Н/м}^2. \quad (6)$$

Воспользовавшись условием конгруэнтности испарения и выражениями (5) и (6), температурную зависимость составов конгруэнтного испарения (x_k) UN можно представить в виде

$$\frac{x_k}{1-x_k} = 1,03 - 4,22 \cdot 10^{-5}T. \quad (7)$$

На рис. 2 приведены рассчитанные зависимости парциальных давлений урана и азота, а также общей скорости испарения от состава $U_{1-x}N_x$ при 1970 К. В составах, близких к стехиометрическому, парциальное давление азота значительно превосходит парциальное давле-

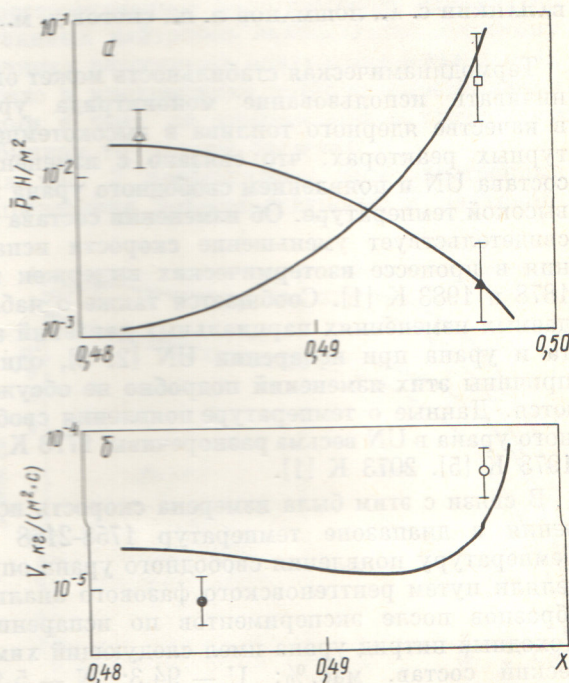


Рис. 2. Зависимость от состава $U_{1-x}N_x$ при 1970 К: а — парциальных давлений азота ($\square$) и урана ($\blacktriangle$, $\triangle$) [2,8]; б — скорости испарения исходного ($\circ$) и конгруэнтного ($\bullet$) составов

ние урана (см. рис. 2), что должно привести к обеднению монокристалла урана азотом (7). При этом парциальное давление азота и скорость испарения уменьшаются, а парциальное давление урана возрастает до тех пор, пока не реализуется конгруэнтное испарение. Вышеизложенное объясняет экспериментально наблюдаемые в работах [1—3] изменения скорости испарения и парциальных давлений урана и азота при испарении UN.

В соответствии с уравнением (7) чем выше температура, тем ближе состав конгруэнтного испарения к нижней границе области гомогенности UN. При определенной температуре (1970 К) состав конгруэнтного испарения достигает нижней границы области гомогенности.

Для сравнения с расчетом на рис. 2 нанесены опубликованные данные по парциальным давлениям азота и урана, а также экспериментальные результаты по скорости испарения. В связи с тем, что в работе [8] образцы UN перед исследованием подвергали длительному отжигу при максимальной температуре эксперимента, состав образцов изменился. Поэтому была проведена корректировка результатов [8] на состав, который, согласно уравнению (7), соответствует температуре отжига. На рис. 2, б нанесены экспериментальные данные о скорости испарения исходного состава и состава конгруэнтного испарения UN. Данные для исходного состава соответствуют скорости испарения в начальный момент времени при 1970 К (см.

рис. 1). Конечное, неизменное во времени значение скорости испарения отнесено к составу конгруэнтного испарения, рассчитанному по уравнению (7). Расчетные, экспериментальные и опубликованные данные хорошо согласуются.

Таким образом, установлено, что экспериментально наблюдаемое уменьшение скорости испарения в процессе изотермической выдержки обусловлено обеднением монокристалла урана азотом, а также появлением при 1970 К второй фазы — свободного урана.

Поступила в Редакцию 17/II 1977 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Alexander C., Ogden J., Pardue W. «J. Nucl. Mater.», 1969, v. 31, p. 13.
2. Gingerich K. «J. Chem. Phys.», 1969, v. 51, N 10, p. 4433.
3. Ikeda Y., Tamaki M., Matsumoto G. «J. Nucl. Mater.», 1976, v. 59, N 2, p. 103.
4. Inovye H., Leitnaker J. «J. Amer. Ceram. Soc.», 1968, v. 51, N 1, p. 6.
5. Evans P., Davies T. «J. Nucl. Mater.», 1963, v. 10, N 1, p. 43.
6. Скоров Д. М., Баланкин С. А., Соколов В. С. В сб.: Физико-химический анализ сплавов урана, тория, циркония. М., «Наука», 1974, с. 164.
7. Kaufman L., Clougherty E. In: Metallurgy at High Pressures and High Temperatures. N.Y., AIME, 1964, p. 322.
8. Андриевский Р. А. и др. «Атомная энергия», 1969, т. 26, вып. 6, с. 494.
9. Стормс Э. Тугоплавкие карбиды. М., Атомиздат, 1970, с. 226.

УДК 621.039.54

Размножение нейтронов в уране, бомбардируемом протонами с энергией 300—660 МэВ

ВАСИЛЬКОВ Р. Г., ГОЛЬДАНСКИЙ В. И., ПИМЕНОВ Б. А., ПОКОТИЛОВСКИЙ Ю. Н., ЧИСТЯКОВ Л. В.

Для решения различного рода научных и прикладных задач представляет интерес исследование размножения нейтронов в массивных (квазибесконечных) блоках тяжелых элементов (Pb, Bi, Th, U) под действием частиц, ускоренных до энергий в сотни и тысячи мегаэлектрон-вольт. Например, в комбинации с высокоэнергетическими ускорителями протонов, дейтронов и, возможно, ядер гелия [подобный способ генерации свободных нейтронов, часто называемый электроядерным, мог бы в принципе оказаться полезным дополнением к самоподдерживающе-

муся цепному процессу деления ядер и управляемому термоядерному синтезу при крупномасштабном производстве нейтронов вообще и в ядерной энергетике в частности. Идея способа генерации свободных нейтронов с помощью ускорителей протонов или дейтронов была высказана в конце 40-х годов независимо Н. Н. Семеновым в СССР и Э. Лоуренсом в США и в дальнейшем разрабатывалась в США и Канаде до уровня технических проектов электроядерных установок [1, 2]. Возможная роль таких устройств обсуждалась в работах [2—9].