

Р и с. 4. Сравнение результатов расчетного и экспериментального определения при  $R_\theta = 5,78$ ,  $R_z = 3,13$  и  $n = 0,15$  [1] предельных равномерных деформаций в направлениях  $\theta$  и  $z$  (а) и интенсивности предельной равномерной деформации (б)

Сопоставление с изотропным случаем показывает, что игнорирование анизотропии может привести к значительным (до 50%) расхождениям в оценке несущей способности. Смещение кривых предельных напряжений для реальных изотропных оболочек ( $0 < n < 0,3$ ) [6] наблюдается и для анизотропного случая, причем при  $m > 1 + 1/R$  смещение направлено наружу, а при  $m < 1 + 1/R_0$  — внутрь области, ограниченной кривой для жесткопластического материала.

Значения предельных равномерных деформаций для аналогичных текстур приведены на рис. 2. Примечательно, что при  $m$ , меньших, но близких к  $1 + 1/R_0$ , разрушение происходит вследствие потери устойчивости пластического деформирования в окружном направлении, хотя окружная предельная равномерная деформация близка нулю. Иными словами, при таком соотношении напряжений локализация деформации и последующее разрушение произойдут при нулевой равномерной деформации в окружном направлении. По-видимому, это связано с влиянием геометрической формы оболочек, поскольку для пластин ничего подобного не наблюдается [2].

Сравнение результатов экспериментального определения [1, 7] предельных напряжений и равномерных деформаций оболочек твэлов типа ВВР диаметром  $12 \times 0,8$  мм из циркония-2 с расчетными значениями указывает (рис. 3,4) на хорошее качественное и количественное соответствие, что подтверждает применимость статического критерия потери устойчивости пластического деформирования для оболочек из сплавов циркония. Таким образом, при проектировании стержневых твэлов с оболочками из сплавов на основе циркония и анализе их эксплуатационной надежности необходимо учитывать геометрический фактор и анизотропию пластического деформирования, которые существенно влияют на предельные напряжения и равномерные деформации пластичных оболочек при кратковременном нагружении.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Miyamoto Y. e.a. «J. Nucl. Mater.», 1976, v. 61, p. 53.
2. Головлев В. Д. «Машиноведение», 1966, № 2, с. 112.
3. Хилл Р. Математическая теория пластичности. М., Гостехтеориздат, 1956.
4. Andersson T. «J. Nucl. Mater.», 1976, v. 62, p. 95.
5. Rittenhouse P. Ibid., 1967, v. 24, p. 310.
6. Максак В. И. В кн.: Упругость и неупругость. Вып. 1. М., изд. МГУ, 1971, с. 159.
7. Maki H. e.a. In: Proc. Intern. Conf. «Nuclear Fuel Performance». London, 1973, p. 621.

Поступила в Редакцию 18.05.77

УДК 548.7:669.822

## Кристаллическая структура $\gamma^s$ -фазы в сплавах

U—Mo, U—Re и U—Nb

ЧЕБОТАРЕВ Н. Т., УТКИНА О. Н.

Структура и свойства начальных элементов актиноидной группы обусловлены образованием гибридных  $5f - 6d - 7s$ -состояний и возникновением межатомных связей ковалентно-металлического характера, что в низкотемпературных

модификациях урана, нептуния и плутония проявляется в виде четырех коротких связей [1, 2]. При переходе от этих низкотемпературных модификаций к высокотемпературным происходит уменьшение перекрытия энергетических уровней, ослабле-

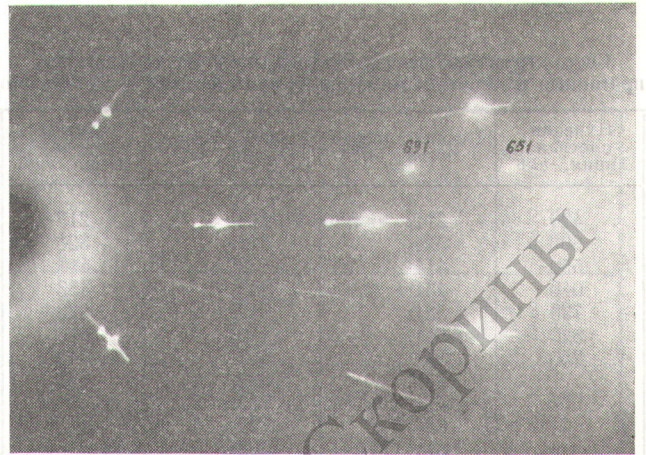


ние ковалентного характера связи и постепенное приближение структуры низкотемпературных модификаций к структуре ОЦК-решетки. Ковалентная составляющая связи уменьшается не только при повышении температуры, но и при легировании. Например, при легировании урана молибденом образуется ряд метастабильных фаз ( $\alpha'$ ,  $\alpha''$ ,  $\gamma^0$ ), в которых с увеличением содержания легирующего элемента уменьшается ковалентная составляющая связи. Если предположить, что ковалентная составляющая связи частично сохраняется и в  $\gamma^s$ -фазе, то кубическая структура последней должна иметь более сложный характер по сравнению с идеальной ОЦК-решеткой.

Ниже приведены результаты исследований структуры  $\gamma^s$ -фазы в сплавах U — Mo, U — Re и U — Nb, частично опубликованные ранее [3].

**Экспериментальные данные.** Исследовали монокристаллы сплавов урана с 12,4; 14,5; 15,4; 18,9 и 23,6 ат. % Mo; 10,5 ат. % Re и 22,2 ат. % Nb. Содержание легирующих элементов в сплавах определяли по шихте, а для сплавов U — Mo, кроме того, уточняли по зависимости периода решетки от концентрации [4]. Литые образцы прокатывали до толщины 1—1,5 мм при температуре 850°C, а затем прокатывали без нагрева до толщины 0,2—0,4 мм. После прокатки образцы подвергали закалке из области  $\gamma$ -фазы, затем сплавы с Mo отжигали в течение 50—300 ч при температуре 1100—1130°C, сплав урана с 10,5% Re в течение 300 ч при температуре 1030°C, а сплав с 22,2% Nb — такое же время при температуре 1200°C. Выбранные при помощи микроскопа МБС-1 зерна выделяли электролитически.

Полученные монокристаллы ориентировали таким образом, чтобы направление [001] располагалось

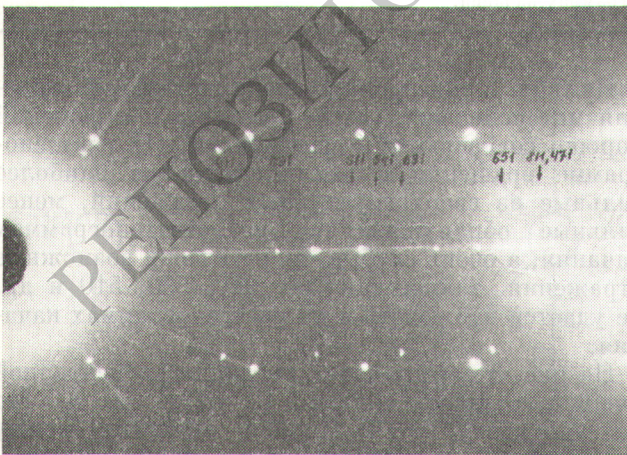


Р и с. 2. Рентгенограмма качания монокристалла сплава урана с 12,4 ат. % Mo

перпендикулярно рентгеновскому излучению, а затем исследовали методами вращения и качания в камере РКВ-86 на  $\text{Cu} - \text{K}\alpha$ -излучении. Интенсивность отражений на рентгенограммах качания и вращения оценивали фотометрированием на микрофотометре МФ-4 и по маркам почернения. Анализ рентгенограмм вращения вокруг направления [001] монокристаллов  $\gamma^s$ -фазы сплавов урана с 12,4 ат. % Mo, 10,5 ат. % Re и 22,2 ат. % Nb показал, что между основными слоевыми линиями (для элементарной ОЦК-ячейки из двух атомов) присутствуют дополнительные, образованные отражениями слабой интенсивности (рис. 1).

Более четкие сверхструктурные отражения от монокристаллов  $\gamma^s$ -фазы сплавов урана с 12,4% Mo, 10,5% Re и 22,2% Nb были получены на рентгенограммах качания (рис. 2). Увеличение содержания Mo в  $\gamma^s$ -фазе сплавов системы U — Mo приводит к уменьшению интенсивности и, наконец, к полному исчезновению сверхструктурных отражений для сплава с 23,6 ат. % Mo.

Результаты индирования сверхструктурных отражений для сплава с 12,4 ат. % Mo представлены в табл. 1. Сверхструктурные отражения соответствуют удвоенной по всем осям ОЦК-ячейке с 16 атомами, имеющей период  $3,442 \times 2 = 6,884 \text{ \AA}$ . Якель [5], исследовавший  $\gamma^s$ -фазу сплава урана с 16,6 ат. % Nb и 5,64 ат. % Zr, пришел к выводу, что удвоение периода решетки обусловлено смещением атомов, занимающих центры малых ячеек, в направлении [100] на значение  $\delta \approx 0,03a_{\text{с.}}$ . Структура относится к простран-



Р и с. 1. Рентгенограмма вращения вокруг направления [001] монокристалла сплава урана с 12,4 ат. % Mo. Цифры отмечены наиболее интенсивные сверхструктурные отражения

\*  $1 \text{ \AA} = 0,1 \text{ нм.}$



Таблица 1

Сверхструктурные отражения на рентгенограммах вращения и качания монокристалла сплава U—12,4 % Мо

Нулевая слоевая линия, $hk0$	Первая слоевая линия, $hk1$	Вторая слоевая линия, $hk2$	Третья слоевая линия, $hk3$
420	211	112	213
600	321	312	323
550	411	402	413
640	431	332	433
730	521	512	523
820	611	442	613
750	541	532	543
	631	622	633
	721	712, 552	
	651	732	
	811, 741	802	
	831	662	
		752	

венной группе  $T_d^3$  [6] при следующих положениях атомов в ячейке:

$$2 \text{ ат.} - 2 (a) : 000, \frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2};$$

$$6 \text{ ат.} - 6 (b) : 0 \frac{1}{2} \frac{1}{2}, \frac{1}{2} 0 \frac{1}{2} \text{ и т. д.};$$

$$8 \text{ ат.} - \frac{1}{3} \cdot 24 (d) : xzx \text{ и т. д.},$$

где  $x = 0,250 \pm 0,001$ ;  $z = 0,250 - \delta = 0,220 \pm 0,005$ .

Однако предположение Якеля о замещении атомами лишь  $1/3$  положений  $24 (d)$  и смещении их в направлении ребер куба не соответствует кубической симметрии структуры. В кубической решетке 8 атомов могут испытывать смещения только в направлениях  $[111]$ . Анализ интенсивности сверхструктурных отражений на рентгенограммах вращения и качания монокристалла  $\gamma^s$ -фазы сплава U — 12,4% Мо показал, что атомы размещаются статистически в следующих положениях пространственной группы  $T_d^3$ :

$$\left. \begin{array}{l} 2 (a) : 000 \\ 6 (b) : 0 \frac{1}{2} \frac{1}{2}, \frac{1}{2} 0 \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \frac{1}{2} 0 \\ 8 (c) : \overline{xxx}, \overline{xxx}, \overline{xxx}, \overline{xxx} \end{array} \right\} + \left( 000, \frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2} \right).$$

Атомный параметр  $x$  можно определить из равенства отношений квадратов структурных факторов двух отражений — сверхструктурного и структурного, например  $(F_{631}^2/F_{642}^2)_{\text{экс}} = (F_{631}^2/F_{642}^2)_{\text{расч.}}$ . Исходя из полученного значения атомного параметра  $x = 0,241 \pm 0,001$ , были определены квадраты структурных факторов сверхструктурных отражений. При расчете учитывали следующие множители: Лоренца, поляризационный, повторяемости и температурный; множитель поглощения не учитывался (табл. 2).

Таблица 2

Наблюдаемые и расчетные данные о сверхструктурных отражениях  $\gamma^s$ -фазы сплава U—12,4 % Мо

N	$hk0, hk1$	%		N	$hk2, hk3$	%	
		$\left(\frac{F_{hk0}^2}{F_{642}^2}\right)_{\text{расч.}}$	$\left(\frac{F_{hk0}^2}{F_{642}^2}\right)_{\text{экс.}}$			$\left(\frac{F_{hk2}^2}{F_{642}^2}\right)_{\text{расч.}}$	$\left(\frac{F_{hk2}^2}{F_{642}^2}\right)_{\text{экс.}}$
1	110	0,0008	—	1	222	0,02	—
2	200	0,003	—	2	312	0,7	0,5
3	310	0,005	—	3	402	0,05	—
4	330	0,04	—	4	332	0,6	—
5	420	0,05	*	5	512	0,5	—
6	510	0,01	—	6	442	0,2	—
7	530	0,08	—	7	532	0,5	—
8	600	0,12	*	8	622	0,2	—
9	710	0,01	—	9	712	0,3	—
10	550	0,18	*	10	552	0,5	—
11	640	0,19	*	11	732	0,4	—
12	730	0,14	*				
13	820	0,28	*				
1	301	0,005	—	1	103	0,005	—
2	231	0,67	0,59	2	213	0,7	0,4
3	411	2,4	2,1	3	303	0,04	—
4	501	0,01	—	4	323	0,6	0,5
5	431	2,0	2,1	5	413	2,0	1,9
6	521	0,5	*	6	433	1,8	1,6
7	611	3,7	4,6	7	503	0,08	—
8	541	1,5	2,7	8	523	0,5	*
9	631	3,2	2,9	9	613	3,2	3,0
10	701	0,01	—	10	543	1,4	1,6
11	721	0,3	*	11	633	2,9	2,2
12	651	2,6	4,8				
13	811	4,8	—				
14	741	1,1	5,5				
15	831	4,3	3,4				

\* Слабые отражения, выявляющиеся только на рентгенограммах качания.

Из табл. 2 видно, что экспериментальные значения интенсивности сверхструктурных отражений хорошо согласуются с расчетными. На рентгенограмме вращения выявляются только наиболее сильные из сверхструктурных отражений, менее сильные обнаруживаются на рентгенограммах качания, а очень слабые, теоретически возможные отражения, такие, как 200, 310, 330, 510 и др. не удается наблюдать и на рентгенограммах качания.

На рис. 3 представлена проекция элементарной ячейки  $\gamma^s$ -фазы сплава U — 12,4 ат.% Мо на плоскость (001). Полная аналогия между рентгенограммами вращения и качания монокристаллов  $\gamma^s$ -фазы сплавов U — 10,5% Re, U — 22,2% Nb и U — 12,4% Мо позволяет заключить, что аналогичны и кристаллические структуры  $\gamma^s$ -фазы этих сплавов. Атомный параметр



Таблица 3

Межатомные расстояния и координация атомов в структуре  $\gamma^s$ -фазы сплавов U—Mo

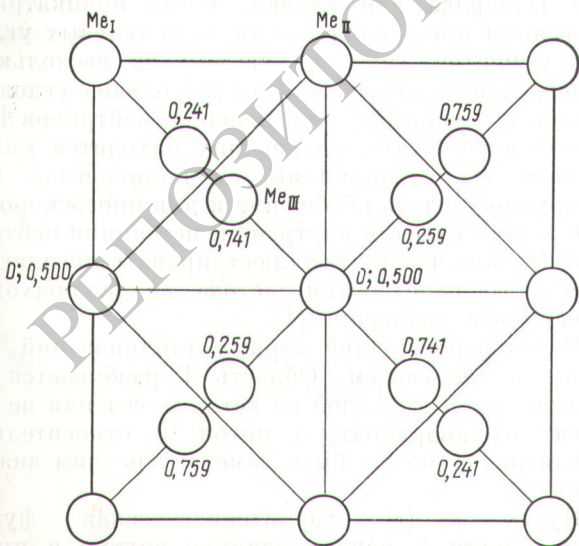
Содержание Mo, ат. %	Межатомные расстояния, Å								$d_{\text{макс}} - d_{\text{мин}}$ , Å
	Me <sub>I</sub>		Me <sub>II</sub>		Me <sub>III</sub>				
	4Me <sub>III</sub>	4Me <sub>III</sub>	4Me <sub>III</sub>	4Me <sub>III</sub>	1Me <sub>I</sub>	3Me <sub>II</sub>	3Me <sub>II</sub>	1Me <sub>I</sub>	
12,4	2,87	3,09	2,95	3,02	2,87	2,95	3,02	3,09	0,22
14,5	2,89	3,06	2,95	3,01	2,89	2,95	3,01	3,06	0,17
15,4	2,89	3,06	2,95	3,00	2,89	2,95	3,00	3,06	0,17
18,9	2,90	3,03	2,94	2,99	2,90	2,94	2,99	3,03	0,13

$x$  структуры  $\gamma^s$ -фазы сплавов U — 10,5% Re и U — 22,2% Nb составляет  $0,241 \pm 0,001$ . Следует отметить, что указанное содержание Mo, Re и Nb отвечает минимальному, обеспечивающему фиксацию  $\gamma^s$ -фазы.

Атомный параметр  $x$  был определен также для  $\gamma^s$ -фазы сплавов урана с 14,5; 15,4 и 18,9% Mo (рис. 4), причем зависимость  $x$  от содержания молибдена может быть представлена уравнением  $x = 0,2344 \pm 0,00055 C$ . Из этого уравнения следует, что при содержании Mo  $\sim 29\%$  возникает идеальная ОЦК-решетка с  $x = 0,250$ .

Исходя из найденных значений атомного параметра  $x$  были рассчитаны межатомные расстояния в структуре  $\gamma^s$ -фазы сплавов урана с различным содержанием молибдена (табл. 3).

**Обсуждение.** Как видно, в кубической структуре  $\gamma^s$ -фазы сплавов урана с Mo, Re и Nb частично сохраняются четыре ковалентные связи, харак-



Р и с. 3. Проекция элементарной ячейки  $\gamma^s$ -фазы сплава урана с 12,4 ат. % Mo на плоскость (001)

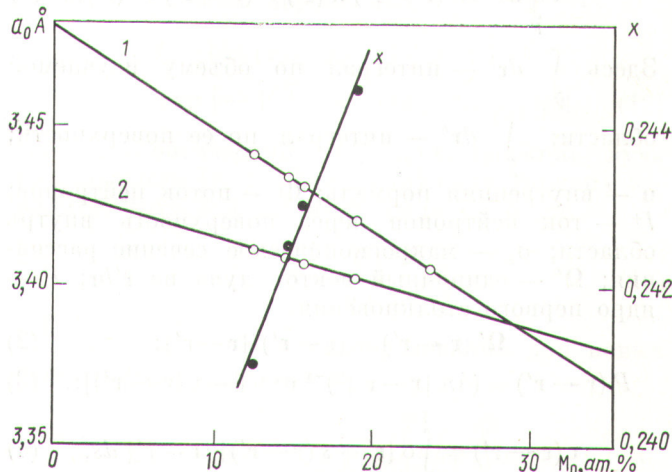
Таблица 4

Длина коротких связей  $d_{\text{мин}}$  в структуре  $\alpha$ -урана и метастабильных фаз системы U—Mo

Содержание Mo, ат. %	Фаза	Структура	$d_{\text{мин}}$ , Å
0	$\alpha$	Ромбическая	2 $d_1 = 2,77$ 2 $d_2 = 2,85$
3	$\alpha'$	»	2 $d_1 = 2,77$ 2 $d_2 = 2,87$
9,4	$\alpha''$	Моноклинная	2 $d_1 = 2,78$ 2 $d_2 = 2,88$
10,5	$\gamma^0$	Тетрагональная	4 $d_1 = 2,86$
12,4	$\gamma^s$	Кубическая	4 $d_1 = 2,87$
14,5			4 $d_2 = 2,95$
18,9			4 $d_1 = 2,90$ 4 $d_2 = 2,94$

терные для структуры  $\alpha$ -урана и метастабильных фаз  $\alpha'$ ,  $\alpha''$  и  $\gamma^0$  системы U — Mo. Длины коротких связей  $d_{\text{мин}}$  этих структур приведены в табл. 4.

В  $\gamma^s$ -фазе сплава урана с 12,4 ат. % Mo существуют короткие связи двух типов:  $4d_1 = 2,87$  Å и  $4d_2 = 2,95$  Å. По мере увеличения содержания молибдена в  $\gamma^s$ -фазе длина коротких связей увеличивается, подобно тому как это имеет место в фазах  $\alpha$ ,  $\alpha'$ ,  $\alpha''$  и  $\gamma^0$ , и структура приближается к идеальной ОЦК-решетке ( $d_{\text{макс}} - d_{\text{мин}} = 0$ ), для которой  $x = 0,250$ .



Р и с. 4. Зависимость периода решетки  $\gamma^s$ -фазы (1) и идеальной ОЦК  $\gamma$ -фазы (2) от содержания молибдена



Отклонение структуры  $\gamma^s$ -фазы от идеальной сопровождается уменьшением степени компактности решетки, т. е. увеличением периода решетки  $a_{\gamma^s}$  по сравнению с периодом идеальной ОЦК-решетки  $a_{\gamma}$  согласно соотношению

$$a_{\gamma^s} = (1 + \delta) a_{\gamma}, \quad (1)$$

где  $\delta = 0,250 - x$

Зависимость периода решетки  $\gamma^s$ -фазы системы U — Mo выражается [4] уравнением

$$a_{\gamma^s} = 3,4808 - 0,00314 C_{Mo} \quad (2)$$

и представлена на рис. 4 (прямая 1).

По уравнению (1), используя полученные значения атомного параметра  $x$ , можно подсчитать значения периодов идеальной ОЦК-решетки  $\gamma$ -фазы исследуемых составов. Соответствующее уравнение имеет вид

$$a_{\gamma} = 3,4283 - 0,00132 C \quad (3)$$

и также представлено на рис. 4 (прямая 2). Из рис. 4 видно, что при  $\sim 29\% Mo$  разность  $a_{\gamma^s} - a_{\gamma} = 0$ .

В заключение следует отметить, что отклонение структуры  $\gamma^s$ -фазы от идеальной ОЦК-решетки

и зависимость степени этого отклонения от концентрации легирующего элемента и температуры должны повлиять на физические свойства рассматриваемых сплавов. В частности, уменьшение доли ковалентной составляющей межатомной связи и увеличение степени компактности структуры  $\gamma^s$ -фазы с повышением температуры должно приводить к появлению отрицательной составляющей коэффициента термического расширения и температурного коэффициента электрического сопротивления.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Чеботарев Н. Т. «Атомная энергия», 1961, т. 10, вып. 1, с. 43.
2. Конобеевский С. Т., Чеботарев Н. Т. Там же, с. 50.
3. Chebotarev N. T., Utkina O. N. In: Proc. Conf. «Plutonium 1975 and other Actinides». Amsterdam, North-Holland Publ. Company, 1976, p. 559.
4. Dwight A. «J. Nucl. Mater.», 1960, v. 2, N 1, p. 81.
5. Yakel H. «J. Nucl. Mater.», 1969, v. 33, N 3, p. 286.
6. International Tables for X-Ray Crystallography. Birmingham, Kynoch Press, 1952.

Поступила в Редакцию 10.04.79

УДК 621.039.512.45

## Полиномиальная аппроксимация потока нейтронов в методе вероятностей первых столкновений

ПОВЕЩЕНКО Т. С., ШЕВЕЛЕВ Я. В.

Метод вероятностей первых столкновений — весьма популярный метод решения кинетического уравнения, записанного в форме интегрального уравнения Пайерлса (например, [1]):

$$\Phi(\mathbf{r}) = \int_V d\mathbf{r}' P(\mathbf{r} \leftarrow \mathbf{r}') \sigma_s(\mathbf{r}') \Phi(\mathbf{r}') + 4 \int_F d\mathbf{r}' \Omega'(\mathbf{r} \leftarrow \mathbf{r}') \mathbf{n}(\mathbf{r}') P(\mathbf{r} \leftarrow \mathbf{r}') I^+(\mathbf{r}'). \quad (1)$$

Здесь  $\int_V d\mathbf{r}'$  — интеграл по объему изучаемой

области;  $\int_F d\mathbf{r}'$  — интеграл по ее поверхности;

$\mathbf{n}$  — внутренняя нормаль;  $\Phi$  — поток нейтронов;  $I^+$  — ток нейтронов через поверхность внутрь области;  $\sigma_s$  — макроскопическое сечение рассеяния;  $\Omega'$  — единичный вектор луча из  $\mathbf{r}'$  в  $\mathbf{r}$ ;  $P$  — ядро первого столкновения.

$$\Omega'(\mathbf{r} \leftarrow \mathbf{r}') = (\mathbf{r} - \mathbf{r}') / |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|; \quad (2)$$

$$P(\mathbf{r} \leftarrow \mathbf{r}') = (4\pi |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2)^{-1} \exp[-\tau(\mathbf{r} \leftarrow \mathbf{r}')]; \quad (3)$$

$$\tau(\mathbf{r} \leftarrow \mathbf{r}') = \int_0^1 \sigma[\mathbf{r}' + s(\mathbf{r} - \mathbf{r}')] |\mathbf{r} - \mathbf{r}'| ds, \quad (4)$$

где  $\sigma$  — полное макроскопическое сечение;  $\tau$  — оптическая длина пути.

Уравнение (1) составлено для простейшей модели: нейтроны попадают в изучаемую область только через поверхность, рассеиваются изотропно и поглощаются, причем сечения не зависят от энергии. Можно записать более общее уравнение Пайерлса для случая, когда индикатриса рассеяния имеет конечное число ненулевых угловых моментов. Получим систему из нескольких интегральных уравнений для нескольких угловых моментов функции распределения нейтронов [2]. Число ядер в этих уравнениях находится умножением  $P$  на полиномы от компонентов  $\Omega'$ . Нетрудно сделать обобщение и для многоскоростной задачи и ввести внутренние источники нейтронов. Однако чтобы проиллюстрировать предлагаемые усовершенствования метода, вполне подходит простейшее уравнение (1).

Метод вероятностей первых столкновений состоит в следующем. Область  $V$  разбивается на мелкие зоны, в каждой из которых сечения не зависят от координат, а поток  $\Phi$  относительно неизменен и может быть заменен средним значением.

Пусть  $g_t(\mathbf{r})$  — характеристическая функция области  $t$ , равная единице внутри и нулю вне этой области;  $\Phi_t$  — среднее значение потока в зоне  $t$ . Тогда основная гипотеза метода выра-