



Рис. 2. Зависимость от флюенса нейтронов КТР исследованных образцов графита ГМЗ, графитированных при 2800°С (обозначения те же, что на рис. 1)

нейтронами при различных режимах. Это позволило все измерения проводить в интервале от -196 до $+20^\circ\text{C}$, что обеспечивало, кроме того, высокую производительность экспериментов.

Для исследования был взят графит ГМЗ, в том числе с одно-, двух- и трехкратным уплотнением пеком полуфабриката с последующим обжигом и графитацией при 2300 и 2800°С. Вариация КТР у образцов таких типов графита достигала 10%.

Образцы облучали при температуре 130–950°С до флюенса $2,5 \cdot 10^{22}$ нейтр./см² ($E > 0,18$ МэВ). Обработка результатов измерений показала, что для образцов, графитованных при 2300°С и вырезанных параллельно направлению продавливания, облучение не влияет на КТР в пределах разброса экспериментальных данных. Уплотняю-

щие пропитки полуфабриката также не повлияли на значение КТР и его радиационное изменение (рис. 1).

Последовательность расположения экспериментальных точек для перпендикулярно ориентированных образцов позволила провести на рис. 1,а одну общую кривую, имеющую немонотонный характер. Подобным же образом после облучения при 500–1175°С [4] изменяется КТР реакторного графита CSF, получаемого путем однократного уплотнения пеком и графитации при 2800°С. Для графитированного при 2800°С графита ГМЗ, в том числе подвергнутого уплотнению, радиационные изменения α_{\parallel} также отсутствуют при флюенсе до $2,5 \cdot 10^{22}$ нейтр./см². Изменение α_{\perp} носит немонотонный характер, однако по сравнению с кривой на рис. 1,а первый максимум сдвигнут в область более высоких значений флюенса (рис. 2).

Таким образом, в графите ГМЗ и его уплотненных вариантах, графитированных при 2300 и 2800°С, при облучении нейтронами до $F = 2,5 \cdot 10^{22}$ нейтр./см² при температуре от 130 до 950°С практически не изменяется α_{\parallel} , а α_{\perp} изменяется не более чем в 2 раза.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 10 лет Первой в мире атомной электростанции СССР. М., Атомиздат, 1964.
- Крамеров А. Я. Вопросы конструирования ядерных реакторов. М., Атомиздат, 1971.
- Лукина Э. Ю., Рагозин В. В. В кн.: Конструкционные материалы на основе графита. Вып. VII. М., «Металлургия», 1972, с. 58.
- Cox I., Helm I. «Carbon», 1969, v. 7, N 2, p. 319.

Поступило в Редакцию 09.01.80

УДК 621.039.5

Оценка результатов измерений средних сечений деления ^{235}U , ^{238}U и ^{239}Pu на спектрах нейтронов деления ^{235}U и ^{252}Cf

ГОРБАЧЕВА Л. В., МАНТУРОВ Г. Н., ЦИБУЛЯ А. М.

Спектр нейтронов деления ^{235}U тепловыми нейтронами и спектр нейтронов спонтанного деления ^{252}Cf являются основными стандартными спектрами нейтронов. Эксперименты, выполненные в этих спектрах, отличаются сравнительной простотой постановки и возможностью надежного воспроизведения. В настоящее время имеется много данных об измерении средних сечений деления ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu и их соотношений на спектрах нейтронов деления ^{235}U и ^{252}Cf [1–16]. Оценка этих данных представляет интерес с точки зрения их использования для проверки и, возможно, корректировки оцененных по результатам дифференциальных измерений сечений деления ^{235}U , ^{238}U и ^{239}Pu в области энергии выше $\sim 0,1$ МэВ.

В таблице приведены экспериментальные данные о средних сечениях деления ^{235}U , ^{238}U и ^{239}Pu , измеренных на спектрах нейтронов деления ^{235}U и ^{252}Cf , а также оцененные значения этих сечений. Последние получены путем минимизации квадратичной формы

$$S = \sum_{i=1}^I \left(\frac{\bar{\sigma}_i^5 - \sigma_i^5}{\Delta_i^5} \right)^2 + \sum_{j=1}^J \left(\frac{\bar{\sigma}_j^8 - \sigma_j^8}{\Delta_j^8} \right)^2 + \sum_{h=1}^K \left(\frac{\bar{\sigma}_h^9 - \sigma_h^9}{\Delta_h^9} \right)^2 + \sum_{l=1}^L \left[\frac{\bar{\sigma}_l^8 / \bar{\sigma}_l^5 - (\sigma_l^8 / \sigma_l^5)}{\Delta_{85}^l} \right]^2 + \sum_{m=1}^M \left[\frac{\bar{\sigma}_m^9 / \bar{\sigma}_m^5 - (\sigma_m^9 / \sigma_m^5)}{\Delta_{95}^m} \right]^2,$$

где индексы 5, 8, 9 соответствуют ^{235}U , ^{238}U и ^{239}Pu ; i, j, k, l, m — номера экспериментов; Δ — погрешность измерения; чертой сверху обозначены оцениваемые средние сечения.

Интегральными критериями непротиворечивости данных служат отношения $S_{\text{мин}}/N$ — полное число экспериментов. Это отношение подчиняется χ^2 -распределению с N степенями свободы, т. е. близко к нормальному со средним I и дисперсией $2/N$. Для экспериментов на спектре нейтронов деления ^{235}U $S_{\text{мин}}/N = 0,98 \pm 0,34$, а для спектра нейтронов деления ^{252}Cf $S_{\text{мин}}/N = 1,16 \pm 0,39$. Столь хорошее статистическое согласие данных говорит о реалистичности полученных авторами и принятых нами погрешностей измерений, а следовательно, и о надежности оценки.

В таблице приведены также результаты усреднения энергетических зависимостей сечений деления, принятых при составлении системы групповых констант БНАБ-78 [17], по спектрам нейтронов деления ^{235}U и ^{252}Cf , для которых считали $\varphi(E, ^{235}\text{U}) = 0,462 \exp(-E/0,965) \times \text{sh} \sqrt{2,243 E}$, $\bar{E} = 1,97$ МэВ, $\varphi(E, ^{252}\text{Cf}) = 0,463 \times \exp(-E/1,072) \text{sh} \sqrt{1,819 E}$, $\bar{E} = 2,13$ МэВ.

Для спектров нейтронов деления принята форма Уатта, так как она несколько лучше соответствует экспериментальным данным, чем максвелловский спектр [18]. Параметры подобраны по условиям описания оцененных значений средней энергии [19] с учетом связи формы спектра нейтронов деления и \bar{v} [20].

В БНАБ-78 $\sigma_f^9(E)$ оценено по данным, опубликованным до 1976 г. Более поздние прецизионные измерения [21]

Сечения деления ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu на спектрах нейтронов деления ^{252}Cf и ^{235}U , мб*

Литература	Год	$\bar{\sigma}_f^5$	$\bar{\sigma}_f^8$	$\bar{\sigma}_f^9$	$\bar{\sigma}_f^8/\bar{\sigma}_f^5$	$\bar{\sigma}_f^9/\bar{\sigma}_f^5$
Спектр деления ^{252}Cf						
[1]	1971		310±25	1800±60		
[2]	1972		324±14		0,268±0,006	
[3]	1975	1265±19	347±6			
[4]	1975	1249±41				
[5]	1976	1205±27			0,264±0,004	1,500±0,024
[6]	1977			1861±30		
[7]	1977	1215±17		1790±34		
Совместная оценка		1238±9	333±4	1835±18	0,269±0,003	1,482±0,016
Расчет (БНАБ-78)**		1244(+0,5)	322(-3,3)	1835(0)	0,259(-3,7)	1,475(-0,5)
Расчет (ENDF/B-IV)		1245	313	1790	0,251	1,440
Спектр деления ^{235}U						
[8]	1951	1440±100	310±10	1930±130		
[9]	1967	1330±50		1870±50		
[10]	1957		313±5			
[11]	1957		304±15			1,42±0,03
[12]	1968				0,260±0,016	
[13]	1970		308±15			
[14]	1970	1335±55	353±30			1,48±0,03
[15]	1974				0,262±0,012	
[16]	1975	1203±30		1811±60	0,254±0,005	
Совместная оценка		1245±18	313±3	1824±20	0,251±0,003	1,46±0,02
Расчет (БНАБ-78)*		1242(-0,2)	300(-4,2)	1828(+0,2)	0,242(-3,8)	1,47(+0,8)

* 1 мб = 10^{-31} м².

** В скобках указаны расхождения, %.

не выявили необходимости систематического увеличения или уменьшения этого сечения. При оценке $\sigma_f^9(E)$ для лучшего согласия с результатами измерений на спектрах нейтронов деления предпочтение отдавалось наиболее высоким значениям. Оцененное по данным, опубликованным до 1976 г., $\sigma_f^9(E)$ было увеличено на 1,5 % в целях лучшего описания критических экспериментов [17]. Последующие более точные дифференциальные измерения [21] полностью подтвердили необходимость таких изменений. Таким образом, принятые оценки сечений $\sigma_f^9(E)$ и $\sigma_f^8(E)$ соответствуют данным совокупности всех дифференциальных экспериментов, учтенных в современных оценках (для примера в таблице приведены $\bar{\sigma}_f$, вычисленные по данным ENDF/B-IV [5]).

Обращает на себя внимание факт идеального согласия сечений деления ^{235}U и ^{239}Pu , полученных усреднением оцененных кривых $\sigma_f(E)$ по спектрам нейтронов деления, с совершенно независимыми результатами оценки прямых измерений этих средних сечений. В то же время дифференциальные и интегральные измерения сечения деления ^{238}U неудовлетворительно согласуются между собой: расхождения в $\bar{\sigma}_f^8$ составляют 11—13 мб, что втрое превышает погрешности результатов оценки прямых измерений. Таким образом, несмотря на повышение точности результатов дифференциальных и интегральных измерений σ_f^8 , расхождение между ними, отмечавшееся и ранее [22], продолжает сохраняться.

Одна из главных целей настоящей работы состоит в том, чтобы обратить внимание экспериментаторов на необходимость разрешения указанного противоречия. Следует отметить, что объяснить наблюдающееся расхождение неточностью знания спектров нейтронов деления достаточно трудно. Согласно оценке [19], погрешность

в \bar{E} составляет $\sim 1,5\%$, что ведет к погрешности в $\bar{\sigma}_f^8 \sim 1\%$, а расхождения составляют $\sim 3\%$.

В то же время необходимо подчеркнуть, что отмеченное противоречие в данных по σ_f^8 практически не сказывается на результатах многогрупповых расчетов скорости деления ^{238}U в реакторах. Групповые константы (и БНАБ-78, и предыдущие версии этой системы констант) составлены с учетом условия сохранения коэффициента размножения на быстрых нейтронах μ_8 для среды из ^{238}U : $\mu_8 = 1 + v_8 \bar{\sigma}_f^8 / \sigma_y^8$ и $\mu_8 = 1,173 \pm 0,002$ [23—25] (σ_y^8 — сечение увода нейтронов деления под порог деления ^{238}U , вычисленное с учетом частичной компенсации поглощения и неупругого увода размножением нейтронов за счет деления ^{238}U). Таким образом, неточность значения $\bar{\sigma}_f^8$ компенсируется значением σ_y^8 , которое обеспечивает сохранение μ_8 , а следовательно, и сохранение расчетной интенсивности делений ^{238}U при заданном уровне мощности. Однако это обстоятельство не снимает, конечно, необходимости разрешения отмеченного противоречия между дифференциальными и интегральными измерениями сечения деления ^{238}U .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Pauw H., Aten A. «J. Nucl. Energy», 1971, v. 25, p. 459.
2. Grundl J., Spiegel V. «Trans. Amer. Nucl. Soc.», 1972, v. 15, p. 945.
3. Адамов В. М. и др. В кн.: Нейтронная физика. Материалы 3-й Всесоюз. конф. по нейтронной физике. Ч. 6. М., изд. ЦНИИатоминформ, 1976, с. 19.
4. Heaton II H. e.a. «Bull. Amer. Phys. Soc.», 1975, v. 20, p. 146.

5. Heaton H. e.a. In: Proc. of the NEANDC/NEACRP Specialists Meeting on Fast Neutron Cross Section of ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu . Argonne, ANL-76-90, 1976, v. III, p. 333.
6. Адамов В. М. и др. В кн.: Нейтронная физика. Материалы 4-й Всесоюз. конф. по нейтронной физике. Ч. 3. М., изд. ЦНИИАтоминформ, 1977, с. 158.
7. Davis M., Knoll G. «Ann. Nucl. Energy», 1978, v. 5, p. 583.
8. Бондаренко И. И., Ковалев В. П. In: Proc. Symp. «Pile Neutron Research in Physics». Vienna, IAEA, 1962, p. 160.
9. Ковалев В. П. и др. «ЖЭТФ», 1957, т. 33, с. 1069.
10. Leachman R., Schmitt H. «J. Nucl. Energy», 1957, v. 4, p. 38.
11. Reehmond R. In: Progress in Nuclear Energy. Ser. 1, v. 2, p. 1. N.Y., Pergamon Press, 1957.
12. Grundl J. «Nucl. Sci. Engng», 1968, v. 31, p. 191.
13. Bresesti A. e.a. Ibid., 1970, v. 40, p. 331.
14. Fabry A. e.a. In: Proc. Conf. «Nuclear Data for Reactors». Vienna, IAEA, 1970, v. II, p. 535.
15. Grundl J. Rep. NCSAC-42, 1971, p. 175.
16. Fabry A. e.a. In: Proc. Conf. «Nuclear Cross Sections and Technology». Washington, NBS, 1975, v. 1, p. 254.
17. Абагян Л. П. и др. «Атомная энергия» 1980, т. 48, вып. 2, с. 117.
18. Старостов Б. И., Семенов А. Ф., Нефедов В. Н. Препринт НИИАР П-13 (347). Димитровград, 1978.
19. Grundl J., Eisenhauer C. [16], p. 250.
20. Terrell J. «Phys. Rev.», 1959, v. 113, p. 527.
21. Proc. of the NEANDC/NEACRP Specialists Meeting on Fast Neutron Cross Sections of ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu . Argonne, ANL-76-90, 1976.
22. Николаев М. Н. В кн.: Ядерные константы. Вып. 8, ч. 1. М., изд. ЦНИИАтоминформ, 1972, с. 10.
23. Лейпунский А. И. и др. В кн.: III Женевск. конф. 1964, докл. № 369.
24. Николаев М. Н., Голубев В. И., Бондаренко И. И. «ЖЭТФ», 1958, т. 34, с. 752.
25. Chaudat J., Parrouzet M., Fisher E. Rep. KFK-1865 (CEA-R-4552), 1974.

Поступило в Редакцию 22.01.80

УДК 621.039.75

Связующее для локализации отходов низкой и средней активности

ЗАХАРОВА К. П., ВОЛКОВА О. И., ОРЛОВА А. А., БОРЗУНОВ А. И., НАЗИН Е. Р., САДОВНИКОВ Ю. Н., КАРАТАЕВА Т. М.

Одна из важных проблем, возникающих с развитием ядерной энергетики, — проблема обращения с большим количеством жидких отходов низкой и средней активности, надежной локализации которых можно добиться переводом их в твердые материалы, обладающие достаточной радиационной и химической устойчивостью. В нашей стране для отверждения отходов низкой и средней активности разработаны метод и промышленные аппараты битумирования [1]. Внедрение этого метода на АЭС потребует значительного расхода битума. Следует отметить, что для отверждения радиоактивных отходов наиболее подходящими считаются марки битума с низкой температурой размягчения, например БН-2, БНК-2.

Поскольку битум широко применяется в народном хозяйстве, нами была предпринята попытка найти аналогичное связующее среди отходов многоотоннажных химических производств. К таким отходам принадлежит остаточный продукт испарительной камеры производства диметилтерефталата ДМТик [2]. Только на одном Могилевском комбинате синтетического волокна количество ДМТик достигает 4,5 тыс. т/год; стоимость его составляет 6 руб./т [3, 4].

ДМТик представляет собой темно-коричневую вязкую массу, на 85—90 % состоящую из продуктов термического превращения (большая часть метиловых эфиров терп и изофталевых кислот [2]). ДМТик не растворяется в воде и имеет достаточно хорошую адгезионную способность к минеральным материалам. По своим основным физическим свойствам (кроме пенетрации) ДМТик близок к битуму (легко размягчается при нагревании и снова отвердевает при охлаждении). Ниже показано, что, как и битум, ДМТик может быть охарактеризован температурой размягчения, вспышки и пенетрацией.

	ДМТик	Битум	БНК-2
Температура размягчения по КиШ, °С . . .	37	38—42	
Пенетрация, 01 мм . . .	29	183—164	
Температура вспышки в открытом тигле, °С	230	240	

Лабораторные испытания ДМТик как связующего для модельных и реальных радиоактивных отходов пока-

зали, что процесс включения в ДМТик отходов практически не отличается от процесса битумирования и состоит в том, что нагретый до 100—180°C ДМТик смешивается либо с радиоактивными растворами и шламами, либо с сухими остатками предварительно обезвоженных радиоактивных отходов. При введении жидких отходов вода испаряется, а сухой остаток равномерно распределяется в массе ДМТик.

Дериватографические исследования смеси ДМТик с нитратом натрия (основным окислителем в составе отходов) показали, что, как и для битума БНК-2, взаимодействие нитрата натрия с компонентами связующего, сопровождающееся значительным выделением тепла, происходит при температуре выше 300°C, что более чем на 100° превышает температуру, принятую для проведения процесса отверждения (рис. 1).

Допустимая степень наполнения ДМТик сухим остатком отходов находится в тех же пределах (40—60 мас. %). При этом, если при 40 %-ном наполнении водостойкость компаундов на основе битума и ДМТик практически одинакова, то при 60 %-ном наполнении водостойкость компаундов на основе ДМТик становится выше водостойкости таких же битумных компаундов (рис. 2, 3). Более высокую водостойкость имеют и компаунды на основе ДМТик и реальных радиоактивных отходов при наполнении ~ 50 % (рис. 4).

Для технологического оформления процесса большое

Рис. 1. Дериватограммы компаундов состава (мас. %): 40 % ДМТик + 60 % нитрата натрия (1); 40 % БНК-2 + 60 % нитрата натрия (2).

