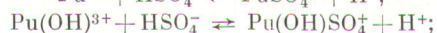


висимости  $D = f([H_2SO_4])$  описываются наилучшим образом только в том случае, если механизм комплексообразования Pu(IV) с  $H_2SO_4$  представлен уравнениями



$$K_{1C}^0 = \frac{[PuSO_4^{2+}] \gamma_{PuSO_4^{2+}} [H^+] \gamma_{H^+}}{[Pu^{4+}] \gamma_{Pu^{4+}} [HSO_4^-] \gamma_{HSO_4^-}} = 3 \cdot 10^3;$$

$$K_{2C}^0 = \frac{[Pu(OH)SO_4^+] \gamma_{Pu(OH)SO_4^+} [H^+] \gamma_{H^+}}{[Pu(OH)^{3+}] \gamma_{Pu(OH)^{3+}} [HSO_4^-] \gamma_{HSO_4^-}} = 5 \cdot 10^4;$$

$$K_{3C}^0 = \frac{[Pu(OH)_2SO_4] \gamma_{Pu(OH)_2SO_4} [H^+] \gamma_{H^+}}{[Pu(OH)_2^{2+}] \gamma_{Pu(OH)_2^{2+}} [HSO_4^-] \gamma_{HSO_4^-}} = 6 \cdot 10^4.$$

При расчете  $K_{1C}^0$ ,  $K_{2C}^0$  и  $K_{3C}^0$  принято: в интервале концентрации 0,01 — 0,1 моль/л экстракцией  $H_2SO_4$  в ТБФ можно пренебречь;  $[H_2SO_4] = [HSO_4^-]$ ; отношения

$\gamma_{PuSO_4^{2+}}/\gamma_{HSO_4^-}$ ,  $\gamma_{Pu(OH)SO_4^+}/\gamma_{HSO_4^-}$  и  $\gamma_{Pu(OH)_2SO_4}/\gamma_{HSO_4^-}$  близки к единице;  $H_2SO_4$  в интервале концентрации 0,01—0,1 моль/л практически не влияет на  $\gamma_{H^+}$ ,  $\gamma_{NO_3^-}$  и  $\gamma_{Pu(OH)_i^{4-i}}$  ( $i = 0 \div 3$ ).

Сопоставление рассчитанных с использованием ранее найденного механизма экстракции Pu(IV) в ТБФ [12, 13] и экспериментальных значений  $D$  Pu(IV) дано в таблице. Следует указать, что коэффициенты активности частиц  $H^+$ ,  $NO_3^-$ ,  $Pu(OH)_i^{4-i}$  ( $i = 0 \div 3$ ) и концентрации (относительные) гидролизированных форм Pu(IV) найдены по методу работ [11—13] на ЭВМ с использованием вычислительных формул [16] последовательными приближениями с усреднением результатов расчета на двух соседних итерациях. Такой метод обеспечивает сходимость вычислений для любых начальных условий.

Сопоставление данных настоящей работы с ранее полученными результатами исследования комплексообразования Pu(IV) с  $H_2C_2O_4$  и  $CH_3COOH$  и Zr(IV) с  $H_2C_2O_4$  [12, 13] со всей очевидностью свидетельствует об определяющем влиянии природы лиганда и способности катиона-комплексообразователя к гидратации на механизм образования и устойчивость комплексных частиц в водных растворах.

Следует отметить, что в случае четырехвалентных Pu, Zr (возможно U, Th и др.) в реакциях комплексообразования с органическими лигандами ( $H_2C_2O_4$ ,  $CH_3COOH$ ) принимают участие не ионы  $M_{aq}^{4+}$ , а ионы  $M(OH)_i^{4-i}$ , прочность гидратных оболочек которых значительно ослаблена в результате снижения заряда и увеличения радиуса гидролизованного иона по сравнению с ионом  $M_{aq}^{4+}$ . Воз-

можно, что при этом изменяется и структура гидратных оболочек [12]. Слабые комплексообразователи ( $CH_3COOH$ ) [13] взаимодействуют только с относительно слабогидратированными частицами типа  $Pu(OH)_2^{2+}$ ;  $H_2C_2O_4$ , обладающая более ярко выраженной склонностью к комплексообразованию, в случае Pu(IV) реагирует с частицей  $Pu(OH)_3^{2+}$ , а в случае Zr — с частицей  $Zr(OH)_2^{2+}$ , прочность гидратных оболочек которых значительно выше, чем у  $Pu(OH)_2^{2+}$ . В изученных условиях  $H_2SO_4$  взаимодействует не только с ионами  $Pu(OH)_i^{4-i}$  ( $i = 1$  и  $2$ ), но и с ионом  $Pu_{aq}^{4+}$ . Тем не менее влияние прочности связей центрального иона с гидратирующими его молекулами воды весьма существенно и в этом случае: значение  $K_{1C}^0$  примерно в 20 раз меньше, чем  $K_{2C}^0$  и  $K_{3C}^0$ .

Совокупность полученных результатов подтверждает высказанное еще в работе [12] положение об определяющем влиянии прочности (и структуры) гидратных оболочек ионов  $M(OH)_i^{4-i}$  ( $i = 0 \div 3$ ) на процессы экстракции и комплексообразования в водных растворах.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Jenkins I.—Hydrometallurgy, 1979, v. 4, p. 1.
2. Rabideau S., Lemons J.—J. Amer. Chem. Soc., 1951, v. 73, p. 2895.
3. Hindman J.—J. Chem. Educ., 1959, v. 36, p. 22.
4. Маров И. Н., Чмутов М. К.—Журн. неорг. химии, 1961, т. 6, с. 1340.
5. Laxminarayana T., Patil S., Sharma H.—J. Inorg. Nucl. Chem., 1964, v. 26, p. 1001.
6. Patil S., Ramakrishna V.—Ibid., 1972, v. 34, p. 3333.
7. Patil S., Ramakrishna V.—Radiochim. Acta, 1973, v. 19, p. 27.
8. Fardy J., Pearson J.—J. Inorg. Nucl. Chem., 1973, v. 35, p. 671.
9. Souka N., Shabana S., Hafez A.—Microchem. J., 1976, v. 21, p. 215.
10. Bagawde S., Ramakrishna V., Patial S.—J. Inorg. Nucl. Chem., 1976, v. 38, p. 1339.
11. Соловкин А. С. Высаливание и количественное описание экстракционных равновесий. М., Атомиздат, 1969.
12. Соловкин А. С.—J. Radioanal. Chem., 1979, v. 21, p. 15.
13. Соловкин А. С., Захаров Ю. Н.—Радиохимия, 1980, т. 22, с. 225.
14. Николотова З. И., Карташова Н. А. Справочник по экстракции. Т. 1. М., Атомиздат, 1976.
15. Соловкин А. С., Ягодин Г. А. Экстракционная химия циркония и гафния. М., изд-во ВИНТИ «Итоги науки». Сер. Неорганическая химия, т. 1, 1969.
16. Зельвенский М. Я., Соловкин А. С.—Радиохимия, 1980, т. 22, с. 642.

Поступило в Редакцию 01.10.80

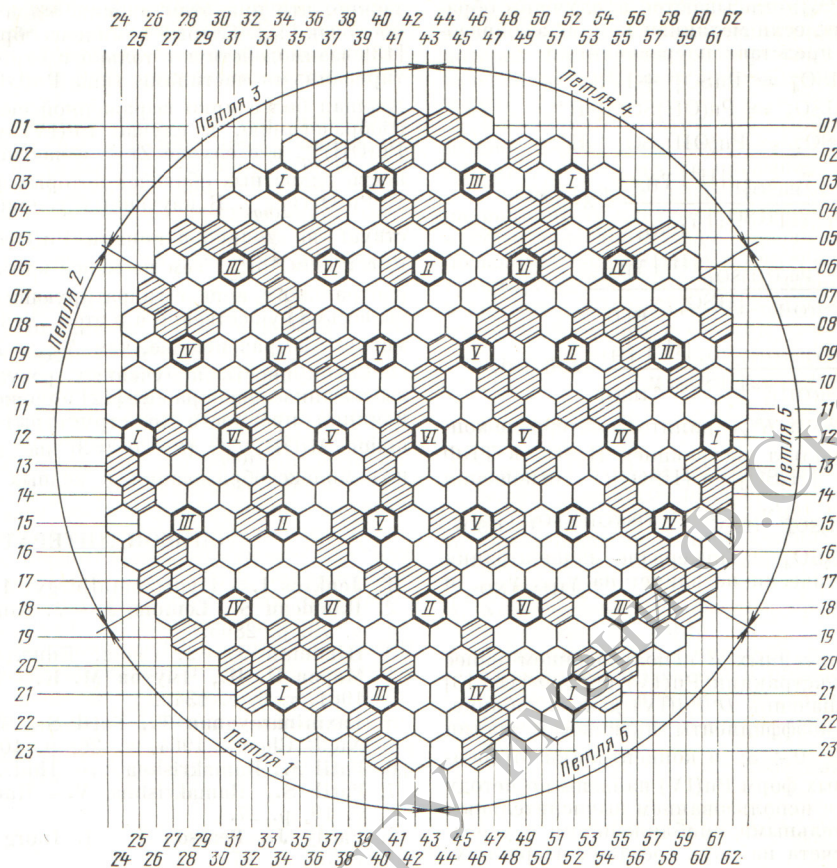
УДК 621.039.524.44:621.0.39.56

## О контроле энергораспределения в активной зоне ВВЭР-440

БОГАЧЕК Л. Н., ГАЗАРЯН К. А., ЛЫСЕНКО В. В., МУСОРИН А. И., ПАВЛОВ В. И., ПАРСАДАНЯН М. М.,  
РЫМАРЕНКО А. И., СААКОВ Э. С., СИМОНОВ В. Д., СТАВЦЕВ Е. П., ЦЫПИН С. Г., ШМОНДИН В. А.

Энергораспределение в активной зоне обычно контролируется с помощью системы внутриреакторных датчиков [1]. Вместе с тем шестипетлевая схема охлаждения реактора ВВЭР-440 создает предпосылки для контроля в каж-

дом из шести секторов активной зоны по энергии, уносимой теплоносителем соответствующих циркуляционных петель (см. рисунок). Причем необходимые для измерения этой энергии датчики могут быть размещены вне реактора.



Картограмма расположения кассет в активной зоне реактора и петель на первом блоке Армянской АЭС; полужирные — кассеты АРК; заштрихованные — рабочие кассеты; светлые — рабочие кассеты с термопарами

### Относительное изменение мощности петель и энерговыделения в соответствующих секторах активной зоны

Координата сброшенной кассеты СУЗ	Метод определения *	Номер петли (сектора)					
		1	2	3	4	5	6
12-25	I	0,96±0,02	0,82±0,03	1,01±0,03	1,09±0,03	1,09±0,03	1,05±0,03
	II	0,97±0,03	0,84±0,04	1,02±0,05	1,09±0,04	1,09±0,03	1,02±0,05
	III	1,01	0,88	1,01	1,03	1,03	1,03
18-49	I	1,00±0,03	1,1±0,04	1,11±0,04	1,10±0,03	0,94±0,05	0,73±0,02
	II	0,98±0,03	1,08±0,06	1,16±0,05	1,06±0,03	0,96±0,08	0,76±0,06
	III	1,01	1,06	1,07	1,06	1,00	0,79
18-49 и 06-55	I	1,14±0,04	1,20±0,04	1,16±0,04	0,82±0,03	0,83±0,03	0,82±0,03
	II	1,15±0,01	1,26±0,09	1,19±0,04	0,81±0,03	0,81±0,03	0,78±0,06
06-55	II	1,14±0,03	1,09±0,03	0,98±0,06	0,74±0,03	0,94±0,04	1,11±0,05
	III	1,06	1,06	1,04	0,81	0,96	1,05
06-43	II	1,09±0,06	1,03±0,04	0,84±0,06	0,86±0,03	1,08±0,09	1,16±0,07
	III	1,06	1,04	0,88	0,91	1,04	1,06
03-40	I	1,07±0,03	1,01±0,03	0,83±0,03	0,93±0,03	1,06±0,03	1,10±0,03
	III	1,05	1,04	0,84	0,97	1,05	1,05
06-49	I	1,07±0,03	1,05±0,02	0,98±0,02	0,83±0,03	1,00±0,03	1,07±0,03
	III	1,05	1,04	1,00	0,85	1,01	1,04
03-40 и 06-49	I	1,17±0,03	1,05±0,03	0,82±0,04	0,83±0,04	1,03±0,03	1,11±0,03
	III	1,11	1,09	0,84	0,78	1,06	1,11

\* I — по измерению разности температур  $\Delta T$ ; II — по измерению активности  $\gamma$ -излучения  $^{16}N$ ; III — расчет по программе БИПР.

Для обоснования такого метода контроля были выполнены эксперименты на реакторе первого блока Армянской АЭС. Транспортируемую в петлях первого контура тепловую энергию определяли двумя способами: по тепловому балансу и по содержанию  $^{16}\text{N}$  в теплоносителе. Первый способ основан на измерении разности температуры теплоносителя в горячих и холодных участках циркуляционных петель штатными термопарами, второй связан с регистрацией  $\gamma$ -излучения  $^{16}\text{N}$  с помощью датчиков, предназначенных для определения расхода теплоносителя в петлях [2] (см. настоящий выпуск, с. 420). Поскольку радиоактивность теплоносителя водоохлаждаемых реакторов пропорциональна плотности потока нейтронов, по изменению интенсивности  $\gamma$ -излучения  $^{16}\text{N}$  можно судить об изменении энерговыделения в той части объема активной зоны, через которую циркулирует теплоноситель данной петли.

Эксперименты проводили в начале и конце второй кампании реактора на мощности около 35% номинальной при идентичных условиях отвода пара из парогенераторов. Первая серия опытов состояла в определении мощности отдельных петель при симметричном энергораспределении в активной зоне. Во второй и последующих сериях перед аналогичными измерениями энергораспределение предварительно «возмущали» путем полного погружения поглотителей одной или двух автоматических регулирующих кассет (АРК) соответственно в один или два сектора активной зоны. Такая же последовательность сохранялась в конце кампании.

В таблице представлено отношение мощности петель при возмущенном и симметричном энергораспределении.

Оно показывает реакцию мощности отдельных петель на введение поглотителей в активную зону. Данные, полученные двумя способами, согласуются в пределах погрешности измерений.

Чтобы удостовериться в том, что перераспределение тепловой энергии в циркуляционных петлях, вызванное деформацией энергораспределения, соответствует его изменению в прилегающих к ним секторах активной зоны, энерговыделение в секторах было рассчитано по трехмерной программе БИПР [3]. В расчетах моделировали состояние реактора во время экспериментов. Обусловленные деформацией энергораспределения в активной зоне экспериментальные значения изменения мощности циркуляционных петель сопоставляли с расчетными изменениями энерговыделения в секторах. Выявлено слабое смешивание потоков теплоносителя различных циркуляционных петель при равенстве расхода по ним. Эта особенность позволяет контролировать энергораспределение в активной зоне путем измерения мощности петель вне реакторными средствами.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Мительман М. Г. и др. Детекторы для внутриреакторных измерений энерговыделения. М., Атомиздат, 1977.
2. Богачек Л. Н. и др.— Атомная энергия, 1979, т. 46, вып. 6, с. 390.
3. Петрунич Д. М., Беляев Е. Д., Киреева И. Л. Препринт ИАЭ-2518, М., 1975.

Поступило в Редакцию 08.09.80

УДК 621.039.555

## Радиоизотопные источники световых импульсов

СОБОРНОВ О. П., ЩЕГЛОВ О. П.

Применяемые для контроля за стабильностью энергетического диапазона сцинтилляционного гамма-спектрометра реперные источники — излучатели  $\alpha$ -частиц — используются различными способами: наносятся на пластинку кристалла Cs(Tl) или металлическую подложку, которые помещают в корпус детектора с кристаллом NaI(Tl) [1] или с кристаллом Cs(Tl) [2]; распределяются равномерно по объему сцинтиллятора [3]; покрываются путем напыления тонким слоем Cs(Tl) [4] и, наконец, вместе с платиновой подложкой и кристаллом заливаются прозрачным силиконовым каучуком [5].

Однако, как показали исследования [2], использование таких детекторов ограничено различием температурных зависимостей световых выходов сцинтилляторов при  $\alpha$ - и  $\gamma$ -возбуждении (рис. 1) и увеличением скорости счета фона детекторов в рабочем диапазоне энергии  $\gamma$ -излучения. Последний недостаток, однако, может быть устранен за счет некоторого ухудшения спектрметрических параметров системы. Детекторы с реперными  $\alpha$ -источниками наиболее целесообразно использовать в гамма-спектрометрах, работающих при постоянной температуре и значительных импульсных нагрузках, т. е. когда основным источником нестабильности системы является фотоумножитель.

Существует область, где система сцинтиллятор — источник  $\alpha$ -излучения, представляющая собой генератор световых вспышек, используется наиболее эффективно, а именно: в качестве устройства для контроля параметров фотоэлектронных приборов. Для этого предлагается применять источники световых импульсов на основе тонких кристаллов Cs(Tl) в сочетании с излучающими  $\alpha$ -частицы радионуклидами, нанесенными на подложку из металла или полимерных материалов (например, терилена).

Такие источники отличаются автономностью, компактностью, стабильностью параметров во времени, простотой изготовления, спектром излучения, соответствующим (или близким) к спектру излучения устройств, работающих с исследуемым фотоприемником (250—800 нм,  $\lambda_{\text{макс}} = 560$  нм), способностью генерировать вспышки, в 5—7 раз превышающие по яркости вспышки от  $\gamma$ -источника  $^{137}\text{Cs}$  (при отсутствии протяженного континуума), высоким энергетическим разрешением (4—6%) и, наконец, низкой эффективностью регистрации  $\gamma$ -квантов, создающих све-

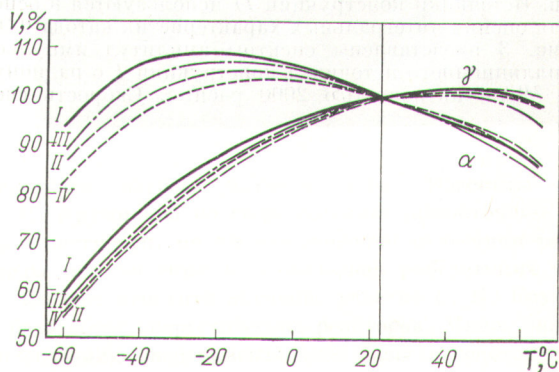


Рис. 1. Изменение амплитуды сигнала четырех сцинтилляционных блоков (I—IV) детектирования с кристаллами CsI(Tl) диаметром 63 × 63 мм и ФЭУ-118 в интервале температуры от —60 до +65°С при возбуждении  $\gamma$ -квантами  $^{137}\text{Cs}$  и  $\alpha$ -частицами реперного источника