

Критические параметры водных растворов соли $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$

Б. Г. Дубовский, А. В. Камаев, Ф. М. Кузнецов,
Г. М. Владыков, Г. А. Попов, Ю. Д. Паламарчук

Приводятся результаты экспериментов по определению критических параметров водных растворов соли $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$.

Путем преобразования геометрического параметра получены критические размеры реакторов в форме сферы, бесконечного цилиндра и бесконечного плоского слоя. Преобразование геометрического параметра осуществлялось с использованием длин экстраполяции и эффективных добавок отражателя, полученных экспериментально.

Эксперименты по определению критических объемов водных растворов соли $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ при 90%-ном обогащении урана проводились на реакторах, имеющих форму сфер, круговых цилиндров и прямоугольных параллелепипедов с водяными отражателями и без них.

Емкости, в которые заключена активная зона, выполнены из нержавеющей стали толщиной 1–1,5 мм для сферических и цилиндрических реакторов и толщиной 3 мм для реакторов в форме параллелепипеда. Концентрация урана в водных растворах соли изменялась от 36 до 460 г/л, что соответствует изменению отношения ядер водорода Q_H к ядрам U^{235} $Q_{\text{U}^{235}}$ от 780 до 50.

Анализ на уран чистых рабочих растворов проводился классическим весовым способом — осаждением диураната аммония [1], а рабочих растворов, содержащих в заметном количестве ($>10^{-4}\%$) примеси других элементов, — специальным весовым способом.

При проведении критических экспериментов без отражателей минимальное расстояние активной зоны от бетонных стен помещения составляло 2 м. Толщина водяного отражателя >20 см. Температура растворов за время экспериментов изменялась в пределах 15–21° С, поправки на температурный эффект реактивности не вводились.

Раствор содержал 13,6 г избыточной азотной кислоты на каждые 100 г урана в 1 л раствора. При такой концентрации избыточной азотной кислоты отношение числа ядер азота к числу ядер U^{235} составляет 2,8.

Изменения критических масс U^{235} за счет изменения отношения $Q_H/Q_{\text{U}^{235}}$ и температуры растворов за время проведения экспериментов не превышают ошибок, связанных с неточностью определения объемов раствора и кон-

центраций урана в нем. Погрешность определения критических объемов растворов составляет 1%, критических масс урана 2%.

На рис. 1 приведена зависимость отношения $Q_H/Q_{\text{U}^{235}}$ от концентрации урана в растворе при $Q_H/Q_{\text{U}^{235}} = 2,8$.

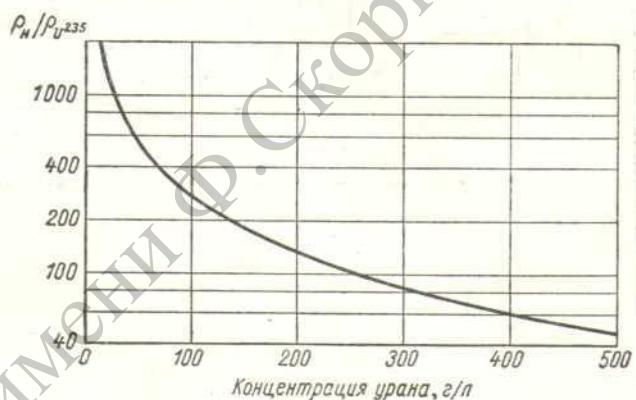
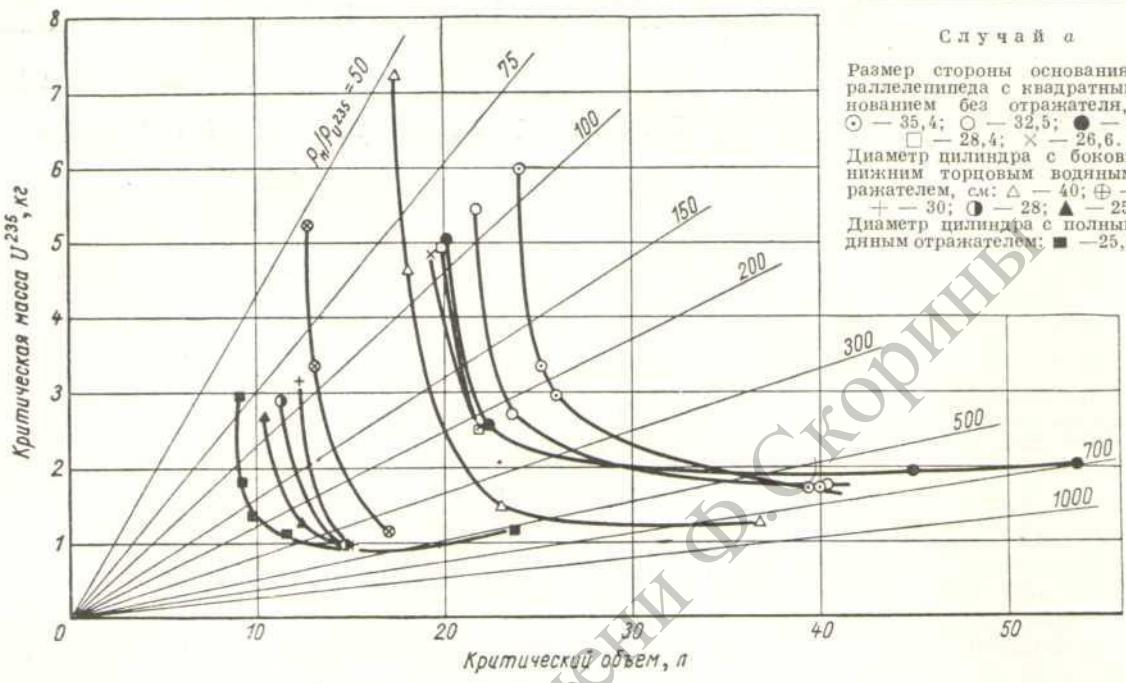


Рис. 1. Отношение $Q_H/Q_{\text{U}^{235}}$ в зависимости от концентрации урана в растворе.

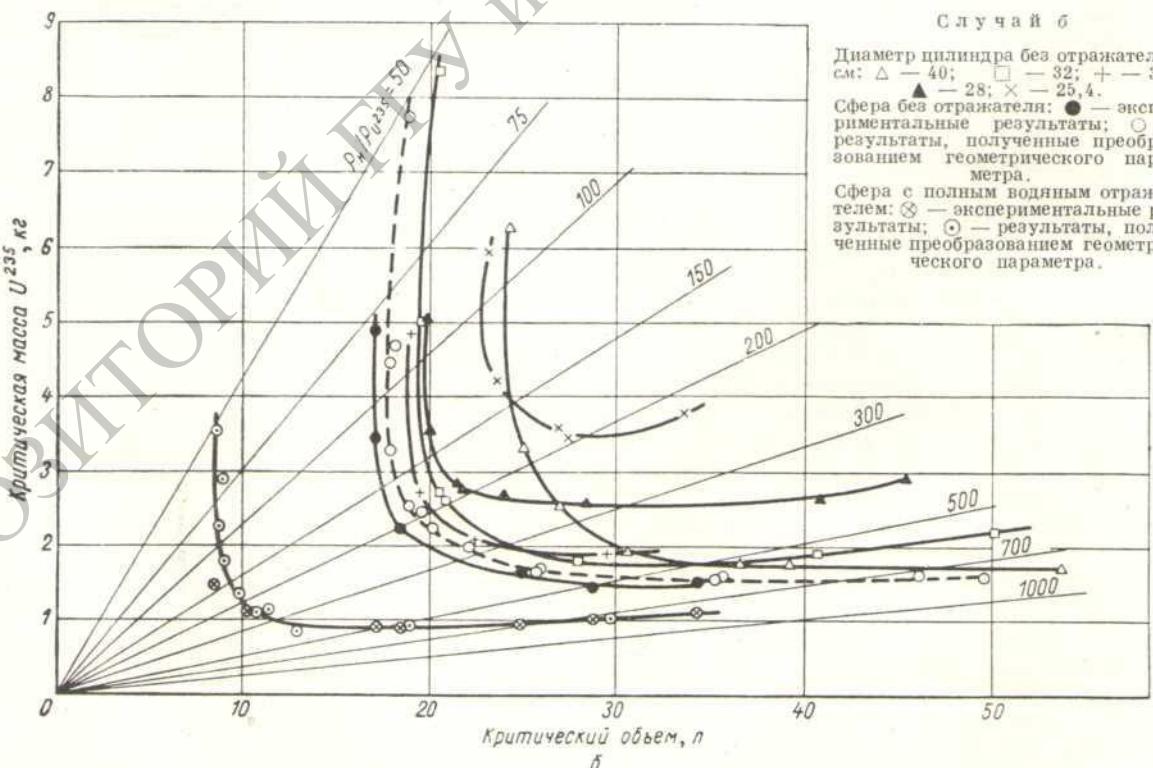
На рис. 2 представлена зависимость критических масс U^{235} и критических объемов водных растворов от концентрации урана в растворе (два случая: *a* и *b*). Прямые, проведенные из начала координат, соответствуют определенной концентрации или определенной замедляющей способности, которая характеризуется отношением $Q_H/Q_{\text{U}^{235}}$. Точки пересечения прямых с кривыми критических масс соответствуют системам, критическим при данном отношении $Q_H/Q_{\text{U}^{235}}$.

Полученные значения критических масс урана несколько превышают значения, приведенные в работах [2, 3]. В этих работах использовался водный раствор соли UO_2F_2 , а емкости, в которые заключена активная зона реакторов, были выполнены из алюминия.

Сравнение приведенных в работе [2] коэффициентов размножения нейтронов K_∞ для растворов UO_2F_2 , с K_∞ для растворов $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, рассчитанными в двухгрупповом приближении с учетом поглощения и размножения нейтронов в процессе замедления, показывает, что для указанных растворов с оди-



а



б

Рис. 2. Зависимость критической массы U^{235} и критического объема водного раствора соли $UO_2(NO_3)_2$ от концентрации урана в растворе для различных форм активной зоны.

наковой концентрацией урана K_∞ имеют различные значения. Это различие K_∞ обусловлено в основном наличием азота в растворах уранилнитрата. Расхождение в значениях критических масс объясняется наличием азота в растворах $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ и действием стальных стенок емкостей в наших экспериментах.

Значения критических масс и критических объемов для сферической активной зоны получены из прямых экспериментов на сферических реакторах, а также преобразованием геометрических параметров. Преобразование заключается в приравнивании геометрических параметров цилиндрических реакторов и реакторов в форме прямоугольных параллелепипедов к геометрическому параметру сферического реактора:

$$\left(\frac{\pi}{H+2\lambda_i}\right)^2 + \left(\frac{2,4051}{D}\right)^2 = \left(\frac{\pi}{R+\lambda_i}\right)^2; \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\pi}{a+2\lambda_i}\right)^2 + \left(\frac{\pi}{b+2\lambda_i}\right)^2 + \left(\frac{\pi}{c+2\lambda_i}\right)^2 = \\ = \left(\frac{\pi}{R+\lambda_i}\right)^2, \end{aligned} \quad (2)$$

где H и D — высота и диаметр активной зоны реакторов в форме цилиндра; a, b, c — размеры активной зоны реакторов в форме прямоугольного параллелепипеда; R — радиус активной зоны сферического реактора; λ_i — эффективная добавка отражателя λ и как частный случай длина экстраполяции λ_0 для реактора без отражателя. Радиусы активной зоны сферических реакторов определялись из выражений (1) и (2). Длины экстраполяции λ_0 и эффективные добавки водяного отражателя λ , использовавшиеся в пересчете геометрических параметров, определялись экспериментально. Значение λ_0 находилось путем определения критических объемов реакторов одинакового состава без отражателя, но различной формы. Для таких реакторов рассчитывался геометрический параметр и подбором длины экстраполяции сводилось к минимуму квадратичное отклонение полученного геометрического параметра от его среднего значения. Для различных форм активной зоны длины экстраполяции принимались одинаковыми. Стальные стенки сосудов действуют как отражатели нейтронов, поэтому при подсчете геометрических параметров реальные размеры активной зоны увеличивались на величину, равную экономии стального отражателя $\delta_{ct} = \lambda - \lambda_0$. Зависимость экономии стального отражателя от его толщины исследовалась

экспериментально. Оказалось, что при толщинах T стального отражателя до 7 мм его экономия пропорциональна толщине и равна

$$\delta_{ct} = 0,9 T. \quad (3)$$

При концентрации урана в растворе 155 г/л значение λ_0 было определено измерением распределения потока нейтронов по высоте цилиндра с помощью индивидуальных индикаторов.

Результаты экспериментов по определению величины λ_0 показали, что для растворов с различными концентрациями урана в пределах ошибок ее определения она оказалась постоянной и равной $2,5 \pm 0,3$ см. В значение ошибки λ_0 включен также эффект отражения нейтронов от стен помещения. Величина этого эффекта оценивалась на основании экспериментов работы [4] и составила $<0,1$ см. Эффективная добавка водяного отражателя λ находилась из формулы работы [5]

$$\lambda = \lambda_0 + \delta_v. \quad (4)$$

Экономия водяного отражателя δ_v определялась как разность критических высот раствора в прямоугольном параллелепипеде без отражателя и при наличии водяного отражателя на дне параллелепипеда.

Для определения влияния стального дна параллелепипеда на критическую высоту раствора при наличии водяного отражателя были проведены эксперименты, в которых толщина стали между активной зоной и водяным отражателем изменялась от 3 до 47 мм. Форма активной зоны — прямоугольный параллелепипед с квадратным основанием. Сталь и водяной отражатель помещались на нижнем торце параллелепипеда. На рис. 3 приведены результаты этих экспериментов для растворов с концентрацией урана 141 (а) и 42 г/л (б).

Экстраполируя кривые к нулевой толщине стали, можно найти увеличение критической высоты раствора $\delta_{ct,v}$ из-за влияния стального дна параллелепипеда.

Экономия водяного отражателя определяется выражением

$$\begin{aligned} \delta_v &= H_0 + \delta_{ct} - (H - \delta_{ct,v}) = \\ &= H_0 - H + \delta_{ct} + \delta_{ct,v}, \end{aligned} \quad (5)$$

где H_0 и H — реальные критические высоты раствора без отражателя и с водяным отражателем на дне параллелепипеда соответственно.

Экономия водяного отражателя, полученная по формуле (5), в пределах ошибок измерений не зависит от концентрации урана в растворе

и равна $3,3 \pm 0,3$ см. Значение δ_b , полученное из экспериментов с плоской поверхностью активной зоны, считалось не зависящим от формы активной зоны и использовалось для определения λ по формуле (4).

Преобразованием геометрического параметра можно получить кроме радиуса активной зоны сферических реакторов размеры активной зоны

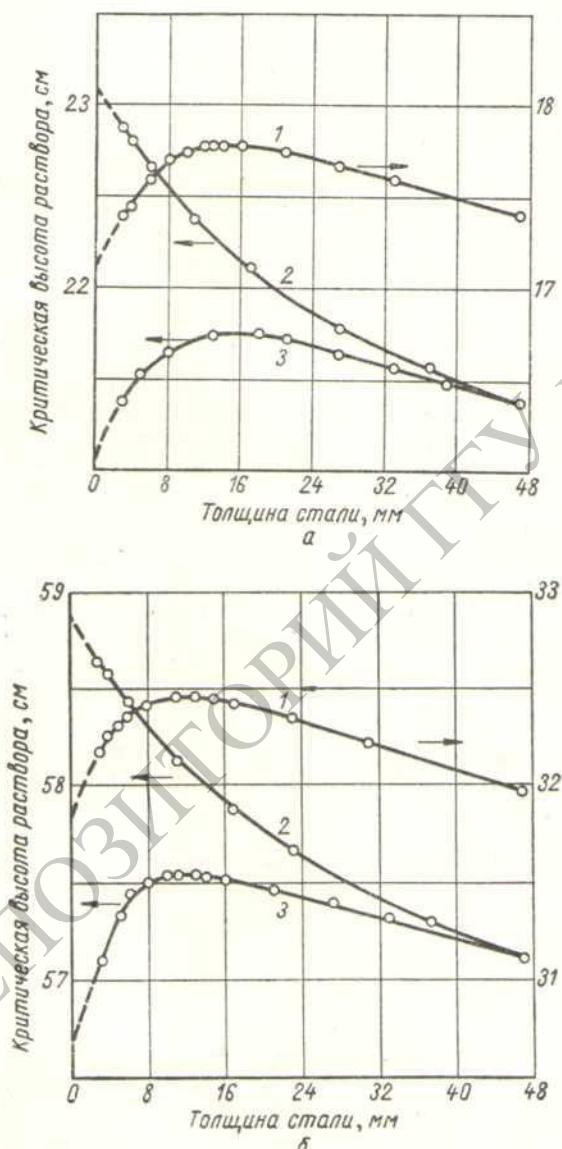


Рис. 3. Зависимость критической высоты водного раствора соли $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ от толщины стали между активной зоной и водяным отражателем. Размер стороны основания, см:

1 — 35,4; 2 — 30,0 (между сталью и водяным отражателем помещен лист кадмия толщиной 0,5 мм); 3 — 30,0.

реакторов в форме цилиндра бесконечной высоты и бесконечного плоского слоя.

На рис. 4—6 показаны зависимости критических размеров реакторов различной формы от концентрации урана в растворе, полученные с использованием значений $\lambda_0 = 2,5$ см и $\lambda = 5,8$ см.

Для проверки полученных значений критических диаметров активной зоны цилиндрических реакторов бесконечной высоты было проведено несколько экспериментов на реакторах в форме высоких цилиндров диаметрами, близкими к критическим диаметрам, полученным

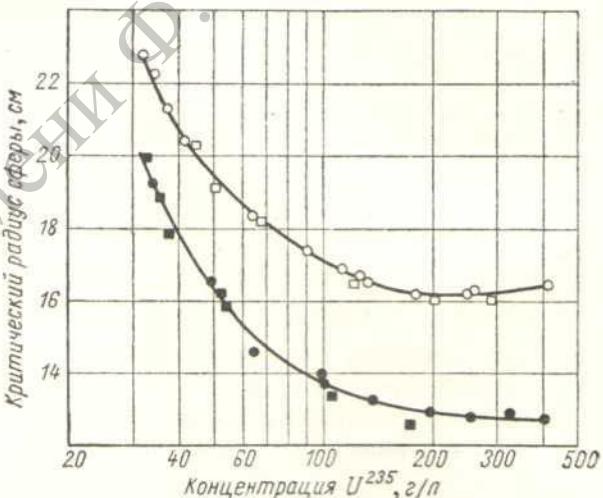


Рис. 4. Зависимость критического радиуса активной зоны в форме сферы от концентрации урана в растворе:

○, ● — без отражателя и с полным водяным отражателем соответственно (результаты получены преобразованием геометрического параметра); □, ■ — то же (экспериментальные результаты).

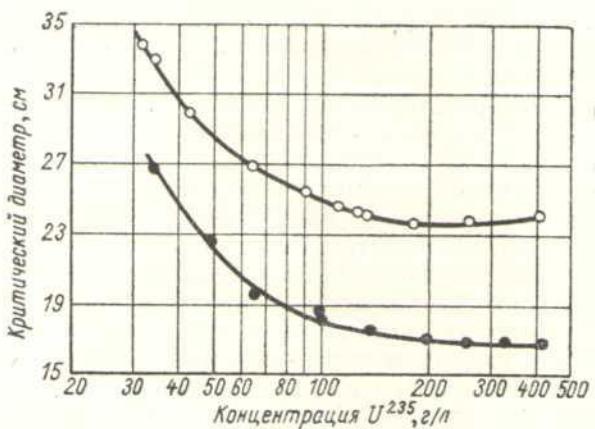


Рис. 5. Зависимость критического диаметра бесконечного цилиндра от концентрации урана в растворе:

○ — без отражателя; ● — с водяным отражателем.

КРИТИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ ВОДНЫХ РАСТВОРОВ СОЛИ $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$

Экспериментально определенные критические размеры цилиндрических реакторов

Концентрация урана, г/л	Диаметр цилиндра, см	Отражатель	Критический объем, л	Отношение высоты реактора к диаметру	Значение критического диаметра бесконечного цилиндра (см. вис. 5), см
277	17	Водяной, без верхнего отражателя	20,3	5,2	
277	16	То же		10,0	
277	24	Без отражателя	26,9	2,5	
277	23	То же		9,8	
76	20	Водяной, без верхнего отражателя	Подкритичен	9,5	
		То же	Подкритичен		23,6
37	24	То же	Подкритичен	8,1	19,5
					26,8

путем пересчета. Результаты этих экспериментов и сравнение их с результатами, полученными путем преобразования геометрического параметра, приведены в таблице. При этом диаметры цилиндров указаны без поправок на эффект стали боковых стенок.

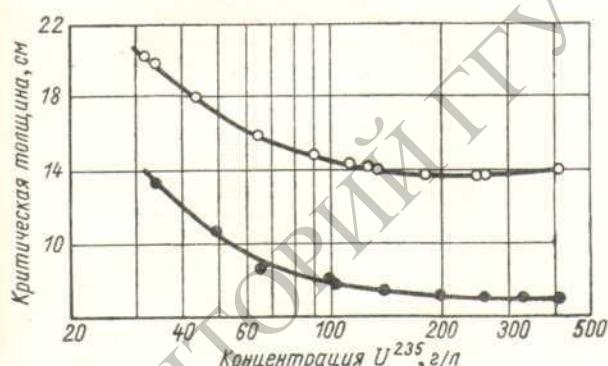


Рис. 6. Зависимость критической толщины бесконечного плоского слоя от концентрации урана в растворе:
○ — без отражателя; ● — с водяным отражателем.

В заключение следует отметить, что приведенные результаты критических экспериментов могут быть использованы для определения критических параметров активных зон реакторов в форме сфер, цилиндров и прямоугольных параллелепипедов, содержащих водные растворы соли $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$.

Сравнение результатов, полученных преобразованием геометрического параметра, с результатами критических экспериментов на реакторах в форме сфер и бесконечных цилиндров показывает удовлетворительное согласие в

исследуемой области концентраций урана. Для концентраций урана более 100 г/л критические параметры активных зон сферических реакторов, определенные экспериментально, имеют меньшие значения. Несмотря на это, результаты, полученные преобразованием геометрического параметра, с точностью $\pm 10\%$ для растворов с водяными отражателями и $\pm 5\%$ для растворов без отражателей, могут быть также использованы при определении критических объемов и критических масс водных растворов соли $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ для растворов с концентрацией урана более 100 г/л. Минимальные критические параметры водных растворов соли $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, полученные преобразованием геометрического параметра, имеют следующие значения: критический объем 8,4 л; критическая масса U^{235} 0,85 кг; диаметр бесконечного цилиндра 16,7 см; толщина бесконечной пластины 6,9 см.

Поступила в Редакцию 17/XI 1962 г.
В окончательной редакции 7/VI 1963 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. К. Марков и др. Уран, методы его определения. М., Атомиздат, 1960, стр. 125.
2. К. Аллихен и др. В кн. «Материалы Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955)», Т. 5. М., Изд-во АН СССР, 1958, стр. 179.
3. Р. Гуин и др. В кн. «Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии». Избр. докл. иностр. ученых. Т. 3. М., Атомиздат, 1959, стр. 77.
4. Х. Рейнольдс. Там же, стр. 7.
5. М. Perkins. Progr. Nucl. Energy. Ser. IV, Technology, Engineering and Safety, V. 3. London, Pergamon Press, 1960, p. 237.