

Определение водорода в натриевом теплоносителе

В. С. КОПЫЛОВ, М. Н. КОРОТАЕВА,
Э. Е. КОНОВАЛОВ

В ядерных энергетических установках, имеющих парогенераторы типа натрий — вода с одной теплопе-
редающей стенкой, возможно попадание воды в натрий. В связи с этим необходим анализический контроль теплоносителя на содержание водорода, находящегося как в форме гидрида, так и гидроокиси.

Решение этой задачи будет более полным, если установить вклад в результаты определений каждой из двух основных форм существования водорода в натрии (H^- и OH^-).

Результаты статистической обработки опытов по определению точности и чувствительности метода

Статистическая характеристика	Опыты по определению точности метода		Опыты по определению чувствительности метода
	серия 1	серия 2	
Число определений n	11	9	15
Средний результат \bar{x} , вес. % H	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$8,6 \cdot 10^{-2}$	$4,7 \cdot 10^{-4}$
Дисперсия S^2	$0,21 \cdot 10^{-6}$	$0,68 \cdot 10^{-4}$	$4,1 \cdot 10^{-8}$
Стандартное отклонение отдельного результата S_x	$0,46 \cdot 10^{-3}$	$0,82 \cdot 10^{-2}$	$2,0 \cdot 10^{-4}$
Стандартное отклонение среднего результата $S_{\bar{x}}$	$0,44 \cdot 10^{-4}$	$0,28 \cdot 10^{-2}$	$0,53 \cdot 10^{-4}$
Критерий Стьюдента с надежностью 0,95 t_{α}	2,228	2,262	2,145
Точность ε_{α}	$0,99 \cdot 10^{-4}$	$0,63 \cdot 10^{-2}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$
Интервалы среднего результата $\bar{x} \pm \varepsilon_{\alpha}$	$(1,8 \div 1,6) \cdot 10^{-3}$	$(8,9 \div 7,7) \cdot 10^{-2}$	$(3,6 \div 5,8) \cdot 10^{-4}$
Наличие статистической ошибки	Нет	Нет	Нет
Относительная погрешность $\frac{\varepsilon_{\alpha} \cdot 100}{x}$, %	6	8	24

Метод, предложенный в настоящей работе, основан на определении общего содержания водорода и гидридного водорода в двух параллельных пробах натрия. По разности результатов этих определений оценивается содержание водорода, существующего в пробе в форме гидроокиси натрия.

Общее содержание водорода находят методами, основанными на измерении выделяющегося в газовую фазу водорода при дистилляции проб натрия (методы термического разложения) [1, 2].

Содержание примеси водорода, существующего в пробе в форме гидрида, определяется путем растворения натрия в нормальном бромистом бутиле [3], отделения свободного натрия от его соединений ($NaOH$, NaN , Na_2O , Na_2CO_3 , карбидов, графитидов, азотсодержащих соединений) и последующего растворения их и образующегося бромистого натрия в воде. Манометрическое измерение (с помощью чувствительного наклонного масляного манометра) выделившегося водорода проводится после вымораживания жидким азотом паров реагентов и возможных побочных продуктов реакции.

Правильность метода устанавливалась путем сравнения результатов анализа, полученных данным способом, с результатами определений водорода методом термического разложения при дистилляции проб натрия, не содержащего примеси гидроокиси [1]. Резуль-

таты опытов показали, что систематическая ошибка отсутствует.

Точность метода определялась по данным воспроизведимости анализа синтезированных образцов гидрированного натрия. Результаты статистической обработки двух серий опытов представлены в таблице.

Чувствительность метода, обусловливаемая ошибкой «холостого» опыта, оценивалась путем анализа натрия, обезгаженного при температуре $600^{\circ}C$ до полного удаления газов, в том числе и водорода. Все

операции по определению величины холостого опыта проводились при условиях, аналогичных условиям обработки реальной пробы натрия. Результаты статистической обработки полученных данных приведены в таблице, из которой следует, что чувствительность определения гидридного водорода в натрии соответствует величине $1 \cdot 10^{-4}$ вес. % H.

Оценка содержания водорода, существующего в форме гидроокиси, может быть осуществлена по разности результатов определений общего содержания водорода и гидридного водорода. При этом точность определения содержаний этой формы водорода устанавливается путем использования закона сложения случайных ошибок. Оценка чувствительности определения водорода, находящегося в форме гидроокиси, дает величину $\sim 2 \cdot 10^{-4}$ вес. %.

Описанный метод определения водорода в натриевом жидкокометаллическом теплоносителе используется также для дифференцированного определения содержания водорода в выкристаллизованных из расплава твердых продуктах холодных ловушек, предназначенных для очистки теплоносителя. В этом случае вследствие значительного содержания в анализируемом материале водорода измерение его при разложении гидрида водой осуществляется обычным волюметрическим методом.

Поступило в Редакцию 26/V 1969 г.
В окончательной редакции 18/VIII 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Г. Д. Павлова, В. С. Копылов. В сб. «Методы определения и исследования состояния газов в металлах». М., «Наука», 1968, стр. 31.

2. М. Н. Ивановский и др. «Атомная энергия», 24, 227 (1968).
 3. J. White, W. Rosse, R. Rowan. Anal. Chem., 26, 210 (1954).

Распределение тепловых нейтронов в цилиндрической ячейке

Н. И. ЛАЛЕТИН

Задача о распределении тепловых нейтронов в цилиндрической ячейке решается развитым ранее [1] методом поверхностных псевдоисточников. Задачу сформулируем следующим образом. В многозонной цилиндрической ячейке имеются постоянные в каждой зоне источники тепловых нейтронов q_h . Полагаем, что поток тепловых нейтронов описывается односкоростным уравнением переноса, причем рассеяние повсюду изотропно и взаимодействие нейтронов с веществом характеризуется полным сечением взаимодействия Σ_h и сечением поглощения Σ_h^a . Рассматриваемое уравнение запишем в виде

$$\begin{aligned} \mu \frac{\partial \psi(\rho, \mu, \varphi)}{\partial \rho} + \frac{(1 - \mu^2) \sin^2 \varphi}{\rho} \cdot \frac{\partial \psi(\rho, \mu, \varphi)}{\partial \mu} - \\ - \frac{\mu \sin 2\varphi}{2\rho} \frac{\partial \psi(\rho, \mu, \varphi)}{\partial \varphi} = \\ = \frac{\Sigma_h - \Sigma_h^a}{4\pi} \int \psi(\rho, \mu, \varphi) d\mu d\varphi + q_h. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь $\psi(\rho, \mu, \varphi)$ — пространственно-угловое распределение нейтронов; ρ — проекция проведенного в месте нахождения нейтрана радиуса-вектора на плоскость, перпендикулярную оси цилиндра z ; μ — косинус угла θ между направлением полета нейтрана Ω и вектором ρ ; φ — угол между осью цилиндра и проекцией направления полета нейтрана на плоскость, перпендикулярную ρ . Уравнение (1) дополняется условиями на границах между зонами и на внешней границе ячейки. На границах между зонами должна соблюдаться непрерывность распределения нейтронов. Условие на внешней границе ячейки сформулируем, предположив, что внешняя зона простирается до бесконечности. На расстоянии от границы ячейки, много большем длины свободного пробега нейтрана, расположим сток нейтронов, интенсивность которого определим из условия равенства нулю тока нейтронов на внешней границе ячейки R . Этот сток имитирует действие всех остальных поглощающих блоков, расположенных в других ячейках, на поле нейтронов в рассматриваемой ячейке. Такая формулировка граничного условия наряду с физической наглядностью имеет то преимущество, что она хорошо приспособлена к методу поверхностных псевдоисточников.

Введем еще цилиндрически симметричную функцию Грина, т. е. поле нейтронов от источника, расположенного в бесконечной однородной среде. В рассматриваемом методе удобно записать эту функцию в виде

$$G(\rho, \Omega/\rho', \Omega') = \sum_{n, m} \sum_{p, k} Y_n^m(\Omega) Y_p^k(\Omega') G_{n, p}^{m, k}(\rho/\rho'),$$

где $Y_n^m(\Omega) = P_n^m(\mu) \cos m\varphi$ — сферическая функция; $n(p) = 0, 1, 2, \dots$; $m(k) = 0, 2, \dots, 2 \left[\frac{n}{2} \right] \left(2 \left[\frac{p}{2} \right] \right)$.

УДК 621.039.51.12

Выражения для $G_{n, p}^{m, k}(\rho/\rho')$ приведены в работе [2]. Теперь можно записать распределение нейтронов в каждой зоне ячейки в виде

$$\begin{aligned} \Psi_h(\rho, \mu, \varphi) = \frac{q_h}{\Sigma_h^a} + \sum_{n=1, 3, 5, \dots} \sum_{m=0, 2, \dots, 2 \left[\frac{n}{2} \right]} g_{n, m}^j \times \\ \times \sum_{p=0, 1, 2, \dots} \sum_{k=0, 2, \dots, 2 \left[\frac{p}{2} \right]} Y_p^k(\mu, \varphi) \times \\ \times G_{n, p}^{m, k}(\rho/\rho_j) + \sum_{n=1, 3, 5, \dots} \sum_{m=0, 2, \dots, 2 \left[\frac{n}{2} \right]} g_{n, m}^{j+1} \times \\ \times \sum_{p=0, 1, 2, \dots} \sum_{k=0, 2, \dots, 2 \left[\frac{p}{2} \right]} Y_p^k(\mu, \varphi) G_{n, p}^{m, k}(\rho/\rho_{j+1}), \end{aligned} \quad (2)$$

где $j = 2(h-1)$ — номер внутренней границы h -й зоны; $g_{n, m}^j$ — интенсивность псевдоисточника, расположенного на j -й границе и испускающего нейтроны с угловым распределением, описываемым сферической функцией $Y_p^m(\mu', \varphi')$; суммирование по n происходит только по нечетным значениям.

У центральной зоны имеется только внешняя граница, и поэтому при $h = 1$ второй член справа в выражении (2) пропадает. Для внешней зоны третий член справа в выражении (2) должен быть изменен, так как в этом случае он будет обусловлен стоком, расположенным далеко от границы ячейки. Угловое распределение нейтронов такого «источника» может быть описано асимптотической формулой $G_{as}(\rho, \Omega)$, причем оно не будет зависеть от деталей углового распределения нейтронов «источника». В результате для распределения нейтронов во внешней зоне получим выражение

$$\begin{aligned} \Psi_H(\rho, \mu, \varphi) = \frac{q_H}{\Sigma_H^a} + \\ + \sum_{n=1, 3, 5, \dots} \sum_{m=0, 2, \dots, 2 \left[\frac{n}{2} \right]} g_{n, m}^j \sum_{p=0, 1, 2, \dots} \sum_{k=0, 2, \dots, 2 \left[\frac{p}{2} \right]} Y_p^k(\mu, \varphi) \times \\ \times \left[G_{n, p}^{m, k}(\rho/\rho_j) - \frac{G_{n, 1}^{m, 0}(R/\rho_j) G_{as}^{p, k}(\rho)}{G_{as}^{1, 0}(R)} \right]. \end{aligned} \quad (3)$$