

УДК 541.15

О термическом разложении вещества в треках ионизирующих частиц

КАЛИНИЧЕНКО А. И., ЛАЗУРИК В. Т.

В последнее время значительно возрос интерес к процессам радиационного разложения вещества, стимулированный, в частности, проблемами водородной технологии [1] и акустической дозиметрии [2]. При этом наблюдаемые химические превращения вещества, взаимодействующего с ионизирующим излучением, связывали, как правило, с реакциями, проходящими при участии медленных электронов, порождаемых частицами излучения [2, 3]. Не исключено, однако, что в треках тяжелых ионов или осколков деления более эффективным может оказаться термическое разложение. Оценки показывают, что плотность энергетических потерь в треке осколка с энергией ~ 100 МэВ сравнима с энергией активации многих химических реакций [4]. Соответствующие локальные перегревы, несмотря на малость объема и времени их существования, ввиду экспоненциальной зависимости скорости разложения вещества от температуры могут приводить к значительному радиационному выходу [5].

В настоящей работе приведены результаты теоретического исследования процесса термического разложения вещества в треке тяжелой заряженной частицы. В качестве оценки величины радиуса трека R/t использовалось выражение [6]

$$R(t) = 2 \sqrt{\kappa(t_0 + t)}, \quad (1)$$

где t — время с момента возникновения трека; $t_0 = R_0^2/4\kappa$; R_0 — радиус области энерговыделения; κ — коэффициент температуропроводности вещества в окрестности разогретой области.

В пренебрежении процессами рекомбинации было получено уравнение для числа разложившихся на единице длины трека молекул $N(t)$:

$$\frac{dN}{dt} = A [\pi n_0 R^2(t) - N] \exp[-u_0/kT(t)], \quad (2)$$

где n_0 — число молекул разлагающегося вещества в единице объема; u_0 — энергия активации; A — константа скорости реакции; k — постоянная Больцмана; $T(t)$ — температура в треке, задаваемая в соответствии с выра-

жением (1) соотношением

$$T(t) = \frac{\Phi(t) |dE/dx| + qN(t)}{4\pi\kappa\rho C(t+t_0)} + T_0,$$

причем вне трека $T(t) = T_0$. Здесь dE/dx — линейные энергетические потери первичной частицы; ρ , C — плотность и теплоемкость вещества в нагретой области; q — теплота реакции в расчете на одну молекулу; T_0 — начальная температура вещества, К. Функция $\Phi(t)$ задает временную зависимость релаксации энергетических потерь иона во внутреннюю энергию (температуру) вещества.

На рис. 1 показано, как зависит от времени ($\tau = At$) количество разложившегося вещества $\nu = AN/4\pi\kappa n_0$ и температура в треке в единицах $\frac{\pi R_0^2 C \rho T(t)}{|dE/dx|}$. Кривые рассчитаны с помощью уравнения (2) при значениях параметров $\tau = At_0 = 300$; $\eta = q/u_0 = -1$; $\frac{A |dE/dx|}{4\pi\kappa n_0 u_0} = 100$, близких к соответствующим значениям для воды. Функция $\Phi(\tau)$ выбиралась в виде

$$\Phi(\tau) = 1 - \exp(-\tau/At_T) \text{ при } At_T = 10,$$

где t_T — характерное время релаксации. Отметим, что в случае, когда t_T мало по сравнению с временем температуропроводности t_0 , оценки количества разложившегося вещества слабо зависят от t_T .

Как видно из хода кривой 1, процесс термического разложения вещества в треке можно разбить на две стадии: стадию быстрого разложения (и связанного с ним быстрого охлаждения) и следующую за ней стадию медленного разложения, когда остывание вещества происходит в основном за счет процессов теплопроводности. Такой двухстадийный характер процесса позволяет получить простые выражения для оценки доли энергии, идущей на разложение вещества:

$$\chi = \begin{cases} 1 - \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_0} + \frac{\varepsilon_1 \varepsilon_0}{|\eta \tau_0|} \exp(\varepsilon_0^{-1}), & \varepsilon_0 > \varepsilon_1; \\ |\eta \tau_0| \exp(-\varepsilon_0^{-1}), & \varepsilon_0 < \varepsilon_1, \end{cases} \quad (3a)$$

$$\chi = \begin{cases} 1 - \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_0} + \frac{\varepsilon_1 \varepsilon_0}{|\eta \tau_0|} \exp(\varepsilon_0^{-1}), & \varepsilon_0 > \varepsilon_1; \\ |\eta \tau_0| \exp(-\varepsilon_0^{-1}), & \varepsilon_0 < \varepsilon_1, \end{cases} \quad (3b)$$

где ε_0 — начальная температура в треке (в единицах $\varepsilon = kT/u_0$); ε_1 — критическая температура (ниже которой энергозатраты на термическое разложение перестают быть главными), определяемая из уравнения

$$\left| \frac{\partial \varepsilon_{ch}}{\partial \tau} \right| = \left| \frac{\partial \varepsilon_T}{\partial \tau} \right|. \quad (4)$$

Здесь $\partial \varepsilon_T / \partial \tau = -\varepsilon / (\tau_0 + \tau)$ — скорость остывания вещества в треке за счет теплопроводности; $\frac{\partial \varepsilon_{ch}}{\partial \tau} = \frac{\eta dN/d\tau}{\pi n_0 R^2 \tau}$ — скорость остывания за счет энергозатрат на разложение. Решение уравнения (4) приближенно может быть представлено в виде

$$\varepsilon_1 = [\ln |\eta (\tau_0 + \tau_1)| + \ln |\ln |\eta (\tau_0 + \tau_1)||]^{-1}, \quad |\eta \tau_0| \gg 1,$$

где τ_1 — продолжительность первой стадии остывания.

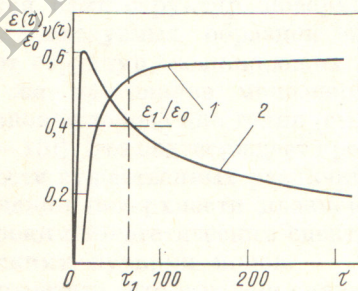


Рис. 1. Зависимость количества разложившегося вещества $\nu(\tau)$ (1) и температуры в треке $\varepsilon(\tau)/\varepsilon_0$ (2) от времени

При выводе выражений (3) предполагалось выполненные условия $N(\tau) \ll \pi n_0 R^2(\tau)$, ограничивающего начальную температуру сверху:

$$\varepsilon_0 < \varepsilon_1 + |\eta|.$$

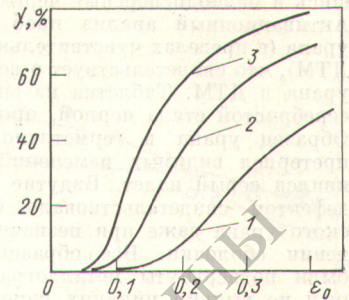
Предполагалась также эндотермичность реакции разложения ($\eta < 0$). В случае $\eta > 0$ при $\varepsilon_0 > \varepsilon_1$ увеличивается энерговыделение в треке.

На рис. 2 показано, как зависит доля энергии χ , идущей на термическое разложение, от начальной температуры. Расчет проведен в соответствии с выражениями (3) при $|\eta\tau_0| = 10; 300$ и 10^4 . Сравнение с результатами расчета согласно уравнению (2) показывает, что полученные простые оценки (3) являются хорошим приближением.

Оценка параметров трека осколков деления в воде, обеспечивающих 50%-ную конверсию энергии, теряемой осколком, в канал термического разложения, дает для необходимого радиуса трека следующие значения: $R_0 = 5 \cdot 10^{-7}$ см, $T_0 = 5 \cdot 10^3$ К и для времени жизни перегретой области $t_0 = 6 \cdot 10^{-12}$ с, что согласуется с современными представлениями о параметрах трека осколка деления в диэлектрике (см. например, [4]). Наличие высокой температуры в треке уменьшает роль рекомбинационных процессов, что для некоторых случаев оправдывает пренебрежение ими при рассмотрении процессов термического разложения.

Отметим, что вид выражения (3а) слабо зависит от модельных предположений, в частности от конкретного вида функций $d\varepsilon_{ch}/d\tau$ и $d\varepsilon_T/d\tau$. При выводе этого выражения в основном использовался лишь факт резкого возрастания вклада термического разложения в процесс остывания трека при температуре, превышающей ε_1 . Таким образом, для описания процесса термического разложе-

Рис. 2. Зависимость доли энергии χ , идущей на химическое разложение, от начальной температуры ε_0 в треке при $|\eta\tau_0| = 10$ (1); 300 (2) и 10^4 (3)



ния вещества в треке частицы достаточно знать параметр ε_1 .

Авторы благодарны Р. И. Гарберу за стимулирующие обсуждения и постоянный интерес к работе.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Дзантиев Б. Г., Ермаков А. П., Попов В. Н. — Атомная энергия, 1979, т. 46, вып. 5, с. 359.
2. Воловик В. Д. и др. — Там же, 1977, т. 43, вып. 1, с. 56.
3. Пикаев А. К. Дозиметрия в радиационной химии. М., Наука, 1975.
4. Митерев А. М. и др. — Химия высоких энергий, 1974, т. 8, № 6, с. 537.
5. Мокульский М. А. — Высокомолекулярные соединения, 1960, т. 2, вып. 1, с. 119.
6. Калининченко А. И., Лазурик В. Т. Деп. ст. ВИНТИ, 1979, рег. № 3498.

Поступило в Редакцию 28.05.80

УДК 621.039.531

Поведение некоторых реакторных материалов в дитолилметане

КАБАНОВ Ю. А., МАСНЫЙ В. Ф., РИЗВАНОВ В. К., СУДАКОВА Н. В., ЮРЧЕНКО А. Д.

Ядерные энергетические установки с теплоносителем из высококипящих органических соединений могут рассматриваться как наиболее перспективные для атомных станций теплоснабжения. Для успешной эксплуатации подобных установок необходимо знать поведение конструкционных материалов и топливных композиций, контактирующих с органическим теплоносителем, в частности с дитолилметаном (ДТМ).

Автоклавным испытаниям подвергали металлический уран, его сплав с молибденом, двуокись урана, технический магний и его сплав ПМБ-2, алюминиевый сплав АД-1, циркониевый сплав Э-110 и графит марок ВПГ, МПГ и РБМК. Испытания образцов проводили в среде ДТМ при температуре 280—300° С и давлении азотной подушки над уровнем теплоносителя 0,2—0,3 МПа. Образцы топливных материалов были изготовлены в виде таблеток и стержней; образцы конструкционных материалов — в виде колец, втулок и пластин; графитовые образцы имели форму стержней диаметром 6 и длиной 40 мм. Испытания проводили в три этапа. Исходные размеры образцов приведены в табл. 1.

Для проверки эффективности защитных покрытий металлические урановые стержни заключали в оболочку из технического магния диаметром $8,2 \times 0,2$ мм. Один из таких образцов имел искусственный дефект в виде отверстия в оболочке диаметром 0,4 мм.

При осмотре образцов после испытаний обнаружено, что форма таблеток из UO_2 не изменилась. Образец из металлического урана полностью разрушился, превратив-

Таблица 1

Геометрические характеристики образцов

Продолжительность этапа испытаний, ч	Образец	Высота, мм	Диаметр, мм
630	Двуокись урана	5,12	8,08
	Металлический уран	5,12	8,04
600	Сплав U + 3 мас.% Мо	23,0	5,20
	Сплав алюминия АД-1	4,03	19,97
650	Металлический уран в магниевой оболочке	13,62	8,20
	Металлический уран в магниевой оболочке с дефектом диаметром 0,4 мм	13,86	8,20
	Сплав магния ПМБ-2	18,70	11,3 × 0,25
	Сплав алюминия АД-1	21,75	11,3 × 0,25
	Сплав алюминия АД-1	3,88	12,0
	Сплав алюминия АД-1	2,85	12,0
	Сплав циркония Э-110	4,67	13,6 × 0,9
	Сплав циркония Э-110	4,24	13,6 × 0,9