

Использование КК для защиты реактора и в пусковых режимах позволило бы заменить АК на КК, следствием чего явилась бы унификация кассет СУЗ, что в свою очередь даст возможность повысить начальный запас реактивности реактора и увеличить глубину выгорания топлива. При этом должны выполняться правила ядерной безопасности (Правила ядерной безопасности атомных электростанций. ПБЯ-04-74. М., Атомиздат, 1976), а также условие, что такая замена не ухудшит безопасности установки по сравнению с существующим состоянием.

На реакторе ВК-50 возможна такая замена с одновременным обеспечением безопасности, если часть кассет КК

(~6) можно будет свободно, подобно кассетам АК, вводить в активную зону со скоростью ~100 мм/с. Тогда в состоянии реактора, близком к критическому, при возникновении аварийного сигнала скорость введения отрицательной реактивности составит ~0,8%/с, что значительно превысит скорость введения положительной реактивности при пуске реактора, допускаемую правилами ядерной безопасности.

В заключение авторы благодарят Н. В. Красноярова за плодотворное обсуждение результатов работы.

Поступило в Редакцию 07.01.80
В окончательной редакции 25.02.81

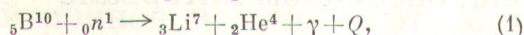
УДК 539.31:669.781

О поведении примеси лития в карбиде бора

КЕРВАЛИШВИЛИ П. Д.

Увеличение работоспособности регулирующих стержней с карбидом бора в основном лимитируется необратимым изменением его некоторых физико-механических свойств в поле нейтронного излучения.

Примесные атомы лития и гелия, выделяющиеся в материале в результате ядерной реакции [1]



существенно влияют на физико-механические свойства карбида бора. Увеличение макроскопического объема материала [2] вызвано как большими, чем у бора, размерами атомов газообразных и твердых продуктов реакции (гелий и литий), так и образованием скоплений газовых пузырьков гелия, что сопровождается увеличением давления в исходных объемных структурных дефектах в изделиях из карбида бора.

Необходимо отметить, что, кроме того, образовавшиеся примесные атомы могут оказывать и косвенное влияние, участвуя в физико-химических процессах, протекающих в веществе при его облучении нейтронами. Примером такой примеси может служить литий, отличающийся высокой химической активностью. Гелий же практически не растворяется в карбиде бора и не вступает в химическое взаимодействие с атомами другого вещества.

Концентрация примесей гелия и лития, как известно, определяется числом элементарных актов взаимодействия нейтронов с атомами B^{10} , что обуславливает существование прямой зависимости между выгоранием и характером изменения физико-механических свойств борсодержащего материала.

При малом выгорании (~1%) влияние лития на свойства карбида бора незначительно. В этом случае гораздо большее значение имеют более подвижные атомы гелия. При увеличении выгорания, например, до 10% литий начинает играть заметную роль в процессах, определяющих ухудшение физико-механических характеристик материала. Если влиянию образующейся примеси гелия посвящен ряд теоретических и экспериментальных работ, то поведение примеси лития практически не изучено.

Найденные [3] методом спектрального анализа значения концентрации свободного лития в карбиде бора, облученного нейтронами, существенно отличались от вычисленных по формуле

$$C_{\text{Li}} = x\sigma Nt, \quad (2)$$

где x — число примесных атомов, образующихся в результате одной ядерной реакции; σ — эффективное сечение ядерной реакции; Nt — число частиц, падающих на единицу площади образца. Хотя выражение (2) справедливо только при малой дозе облучения, оно позволяет оценить концентрацию примеси и при значительном выгорании B^{10} .

Причину расхождения расчета и экспериментов при определении концентрации лития следует искать, по-видимому, в значительной химической активности этого элемента, образующего химические связи с другими элементами, которые присутствуют в карбиде бора в виде технологических примесей.

Если провести аналогию между поведением лития в карбиде бора и поведением лития в элементарных веществах [4], то, используя модель Полинга [5], можно оценить вероятность преимущественного образования химических связей лития с другими примесями.

В изделиях из карбида бора, приготовленных методом горячего прессования на воздухе, после облучения нейтронами присутствуют значительное количество гелия и лития, несвязанные бор и углерод (~2—3 мас.%), газовые примеси кислорода (~1—2 мас.%), азота и водорода (по 0,5—0,8 мас.%). Следует отметить, что в зависимости от условий изготовления изделий концентрация свободного углерода в карбиде бора может достигать 10—15 мас.%.

Следуя модели Полинга, можно сравнить энергию образования химических связей между бором, углеродом, литием и кислородом, присутствующими в материале в количестве более 1 мас.%. Вероятностный ряд образования связей лития с этими элементами в карбиде бора таков: $(\text{Li} - \text{O}) < (\text{Li} - \text{C}) < (\text{Li} - \text{B})$. Причем вероятность образования связи $\text{B} - \text{C}$ занимает промежуточное положение между $\text{Li} - \text{C}$ и $\text{Li} - \text{B}$. Можно полагать, что в процессе облучения нейтронами в карбиде бора, по-видимому, происходит образование соединений типа Li_xO_y , Li_xC_y и Li_xB_y . Вероятность образования окислов бора очень мала, поскольку литий связывает кислород намного легче и быстрее, чем бор. Соединения лития гораздо менее подвижны, чем элементарный литий, поэтому нет оснований ожидать их диффузионный выход на поверхность. Комплексы Li_xO_y , Li_xC_y и Li_xB_y , коагулирующие в скопления субмикронных размеров, обладают меньшей теплопроводностью и меньшей пластичностью по сравнению с материалом матрицы. Это должно приводить к возникновению перепадов температуры и уменьшению критического напряжения образования структурных дефектов в карбиде бора, что сопровождается снижением предела прочности.

Для качественного подтверждения развитых выше представлений в образцы карбида бора в виде таблеток диаметром ~10 мм и высотой ~6 мм диффузионным путем вводили металлический литий чистотой 99.99. Отжиг образцов проводили при температуре ~150 °С в среде химически чистого аргона. Концентрация лития, вводимого в карбид бора, достигала 5—10 мас.%. Измерения показали, что теплопроводность этих образцов уменьшалась в среднем в 1,6 раза по сравнению с теплопроводностью

стью контрольного образца карбида бора. Погрешность измерения составила ~15% при доверительной вероятности ~0,84.

Исследованием механических свойств было установлено уменьшение прочности образцов карбида бора при сжатии в среднем в 2,3 раза. Кроме того, резко уменьшилась температурная стабильность изделий, что, по-видимому, явилось следствием быстрого роста микротрещин при повышении температуры. Следует отметить, что эти результаты находятся в согласии с моделью теплопроводности пористых материалов, обладающих «матричной структурой» [6], и моделью хрупкого разрушения, вызванного локальной пластической деформацией в микрообъемах неоднородного материала [7].

Таким образом, при определении работоспособности карбида бора в нейтронном поле необходимо учитывать примесь лития, которая при высоком выгорании может приводить к необратимому ухудшению физико-механических свойств материала.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Экспериментальная ядерная физика. М., Изд. иностр. лит., 1955.
2. Гольцев В. П. Действие облучения на поглощающие материалы. Минск, Наука и техника, 1975.
3. Secrist D. — J. Amer. Ceram. Soc., 1967, v. 50, N 10, p. 520.
4. Гончаров Л. А., Кервалишвили П. Д., Холодный Л. П. — Научн. труды Груз. политехн. ин-та. Сер. Физика твердого тела. 1979, № 6 (217), с. 27.
5. Полинг Л. Общая химия. М., Мир, 1974.
6. Дульнев Г. Н., Заричняк Ю. П. Теплопроводность смесей и композиционных материалов. Л., Энергия, 1974.
7. Ковальченко М. С. и др. Радиационное повреждение тугоплавких соединений. М., Атомиздат, 1979.

Поступило в Редакцию 19.02.80

УДК 539.125.5

Коррекция потока плутоний-бериллиевых источников нейтронов в межпериодном интервале

ХАРИТОНОВ И. А.

Радиоактивные источники нейтронов на основе смеси ^{239}Pu с Ве нередко используют в качестве рабочих эталонов, образцовых мер единицы потока нейтронов и в некоторых конструкциях эталонов единицы плотности потока тепловых нейтронов [1]. Наряду с преимуществами (низкий γ -фон, малые габаритные размеры при сравнительно высоком удельном выходе нейтронов) источники имеют существенный недостаток — несоответствие изменения потока нейтронов во времени периоду полураспада основного изотопа α -эмиттера — ^{239}Pu [2, 3].

Применяемый для изготовления нейтронных источников α -эмиттер может содержать различные изотопы плутония: ^{238}Pu ($T_{1/2} = 87,77$ года); ^{239}Pu ($T_{1/2} = 2,409 \times 10^4$ лет); ^{240}Pu ($T_{1/2} = 6,54 \cdot 10^3$ лет); ^{241}Pu ($T_{1/2} = 6,0 \cdot 10^5$ лет); ^{242}Pu ($T_{1/2} = 3,76 \cdot 10^5$ лет), а также ^{241}Am ($T_{1/2} = 432,7$ года) [4].

В общем виде зависимость потока нейтронов $\Phi(t)$ от времени можно представить в виде

$$\Phi(t) = \sum_{i=1}^4 p_i q_i \lambda_i \exp(-\lambda_i t) + q_6 p_5 \lambda_6 \frac{\lambda_5}{\lambda_6 - \lambda_5} \times \\ \times [\exp(-\lambda_5 t) - \exp(-\lambda_6 t)], \quad (1)$$

где индексы 1—6 относятся к ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am соответственно; p_i — число ядер изотопа в α -эмиттере; q_i — поток нейтронов на одну α -частицу изотопа в смеси с бериллием; λ_i — постоянная α -распада; λ_5 — постоянная β -распада ^{241}Pu .

Измерение и расчет нейтронного источника

t , год	Φ_a , нейтр./с	Φ_p , нейтр./с	$\frac{\Phi_a - \Phi_p}{\Phi_a}$
2,12	6550	6533	0,25
4,37	6790	6818	0,41
7,62	7190	7178	0,18
8,64	7280	7279	0,01

Выражение (1) позволяет рассчитать изменение нейтронного потока во времени при известном составе α -эмиттера. Однако изотопный состав не является нормируемой характеристикой нейтронных источников.

Выделим частный случай: $\Phi(t)$ рассматривается в таком диапазоне t , что изменение за счет распада ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu несущественно, а значение p_1 настолько мало, что парциальным вкладом ^{238}Pu в полный нейтронный поток можно пренебречь.

Тогда выражение (1) можно преобразовать к виду

$$\Phi(t) = \Phi_0 + \Phi_1 [\exp(-\lambda_6 t) - \exp(-\lambda_5 t)] = \Phi_0 t \Phi_1 x, \quad (2)$$

где Φ_0 — постоянная в указанном приближении часть потока источника; Φ_1 — переменная во времени часть потока, обусловленная процессом накопления ^{241}Am , образующегося за счет β -распада ^{241}Pu .

Как показывает анализ выражения (2), процесс накопления приводит к возрастанию потока источника до $\Phi_{\text{макс}} = \Phi_0 + 0,875 \Phi_1$ в течение 73 лет, так как по α -ветви период полураспада ^{241}Am (432,7 года) существенно меньше периода полураспада ^{241}Pu ($6,0 \cdot 10^5$ лет). В таблице сопоставлены результаты измерения потока нейтронов источника в течение 8,64 года. Из выражения (2) видно, что функция возрастания является прямой линией в зависимости от x , и результаты измерения могут быть использованы для определения Φ_0 и Φ_1 . В таблице указаны значения Φ_p , определенные методом наименьших квадратов (МНК), при этом $\Phi_0 = 623,0$ нейтр./с, $\Phi_1 = 320,2$ нейтр./с. Сравнение расчетных и экспериментальных значений потока нейтронов показывает, что результаты согласуются в пределах погрешности, не превышающей 0,4%.

В настоящее время при использовании плутониевых источников возрастание потока нейтронов за счет америкии не учитывается, что приводит к появлению систематической погрешности в значении потока в период между переаттестациями источника. Эту погрешность можно исключить, воспользовавшись уравнением (2). Действительно, предположим, что при очередной переаттестации источника, происшедшей в момент времени t_a от изготовления источника, установлено значение потока — Φ_a . Тогда поток Φ_τ , который источник будет иметь через промежуток времени τ после аттестации, составит

$$\Phi_\tau = \Phi_a (1 + K),$$