

Выводы. Результаты позволяют сделать следующие выводы:

глубина проникновения расплава в керамику за время эксперимента составляет около 0,12—0,2 мм в случае смешанного расплава стали и циркония и около 0,35—0,4 мм в случае расплава чистого циркония; керамика тигля не претерпевает эрозии под действием расплавов обоих типов; в случае взаимодействия с расплавом циркония в керамике образуется зона разупрочнения за счет восстановления диоксида циркония до $ZrO_{0,35}$;

цирконий и в меньшей степени железо в расплаве в процессе взаимодействия с керамикой на основе диоксида циркония в инертной среде частично окисляются, прежде всего за счет диффузионного переноса кислорода из керамики в расплав;

перенос железа из расплава в керамику выражен слабо;

в условиях инертной среды цирконий является основным коррозирующим компонентом расплава;

при сравнительно небольшом содержании циркония в расплаве сталь+цирконий керамика на основе диоксида циркония обладает достаточно высокой стойкостью к воздействию расплава;

керамика на основе диоксида циркония обладает большей стойкостью к воздействию расплава в этих условиях по сравнению с огнеупорным оксидциркониевым бетоном [1, 2] и строительным бетоном [8].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Арутюнян Р.В., Большов Л.А., Васильев А.Д. и др. Исследование процессов удержания топлива при тяжелых авариях на АЭС. — Докл. АН СССР, техн. физ., 1991, т. 316, № 1, с. 104—107.
2. Onufriev S.V., Borodina T.I., Borovkova L.B. et al. Investigation of the interaction of high temperature metal melt with refractory concretes. — High Temperature — High Pressure, 1994, v. 6, p. 309—315.
3. Wang E., Olander D. Uranium-oxygen and zirconium-oxygen thermochemistry from pure metal to the dioxide and application to core concrete interaction in severe fuel damage accident analysis. — J. Nucl. Mater., 1993, v. 201, p. 231—238.
4. Ball R. et al. The calculation of phase equilibria of oxide core-concrete systems. — Ibid., p. 238.
5. Торопов Н.А., Барзаковский В.П., Бондарь И.А., Удалов Ю.П. Диаграммы состояния силикатных систем. М.-Л.: Наука, 1965.
6. Костюков Н.С., Харитонов Ф.Я., Антонов Н.П. Радиационная и коррозионная стойкость электрокерамики. М.: Атомиздат, 1973.
7. Латышев Л.Н., Петров В.А., Чеховской В.Я., Шестаков Е.Н. Излучательные свойства твердых материалов. Справ. под ред. А.Е. Шейнцлима. М.: Энергия, 1974.
8. Alsmeyer H. BETA experiments in verification of the WECISL code: experimental results on the melt-concrete interaction. — Nucl. Engng Design, 1987, v. 103, p. 115—125.

Поступило в Редакцию 24.03.95

УДК 621.039.512

ВРЕМЯ ЖИЗНИ ПОКОЛЕНИЯ МГНОВЕННЫХ НЕЙТРОНОВ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО РЕАКТОРА С ТЯЖЕЛОВОДНЫМ ОТРАЖАТЕЛЕМ

*Ерыкалов А.Н., Кузьминов В.В., Петров Ю.В.
(ГНЦ ПИЯФ им. Б.П. Константинова РАН)*

В отличие от больших энергетических реакторов, где время жизни поколения мгновенных нейтронов l_0 фактически постоянно, в исследовательских реакторах с тяжеловодным отражателем оно изменяется в процессе кампании. Значение l_0 для них определяется большим временем жизни тепловых нейтронов в тяжелой воде. Ниже рассмотрено влияние на l_0 экранирования активной зоны от тепловых нейтронов отражателя.

Уравнения кинетики в приближении, когда распределение нейтронов описывается в основном первой фундаментальной гармоникой, может быть рассмотрено в рамках точечной модели [1, 2]. Для шести групп запаздывающих нейтронов эти уравнения имеют вид

$$\frac{dn}{dt} + \frac{[\beta^* - \rho]}{l_0} n = \sum_{i=1}^6 \frac{c_i}{\tau_i}; \quad \beta^* = \sum_{i=1}^6 \beta_i^*; \quad (1)$$

$$\frac{dc_i}{dt} + \frac{c_i}{\tau_i} = \frac{\beta_i^* n}{l_0}; \quad i = 1, 2, \dots, 6.$$

Здесь $n(t)$ — полное количество нейтронов в реакторе; $c_i(t)$ — число ядер-предшественников запаздывающих нейтронов i -й группы; τ_i, β_i^* — их время жизни и эффективная доля; $\rho = (1 - 1/k_{эф})$ — избыточная реактивность; $k_{эф}$ — полный эффективный коэффициент размножения с учетом запаздывающих нейтронов.

Время жизни одного поколения мгновенных нейтронов l_0 , входящее в уравнение (1), в групповом приближении [1, 2]

$$l_0 = \frac{\sum_k \langle \Phi_k^+, 1/v_k \Phi_k \rangle}{\sum_k \langle \Phi_k^+, q \rangle}, \quad (2)$$

где v_k — средняя скорость нейтронов k -й энергетической группы; Φ_k — поток нейтронов группы k ; Φ_k^+ — их ценность; q — плотность генерации быстрых нейтронов деления. Интеграл в знаменателе берется только по объему активной части зоны, содержащей делящиеся материалы. Если все нейтроны деления входят лишь в первую быструю группу, то в интеграле существенно только функция $\Phi_1^+(r)$. В числителе слагаемые пропорциональны $\sim 1/v_k$, и основной вклад в интеграл вносят тепловая и надтепловая группы. В исследовательском реакторе с тяжеловодным отражателем нейтроны основное время существуют в тяжелой воде и поэтому основной вклад в числитель (2) дает интеграл по отражателю.

Другой метод определения времени жизни поколения мгновенных нейтронов основан на использовании метода Монте-Карло [3]

$$l_0 = \frac{\sum_{n=1}^{N_f} \Phi_1^+(r_n) \sum_{k=0}^{N_n} \lambda_k^{(n)} / v_k^{(n)}}{\sum_{k=1}^{N_f} \Phi_1^+(r_k)}. \quad (3)$$

Здесь $\lambda_k^{(n)}, v_k^{(n)}$ — длина пробега и скорость нейтрона n -й траектории после k -го столкновения (время между столкновениями $t_k^{(n)} = \lambda_k^{(n)} / v_k^{(n)}$); $\Phi_1^+(r_n)$ — ценность нейтронов деления; N_n — число столкновений, испытываемых нейтроном в n -й траектории. Сумма берется по всем траекториям N_f , которые заканчиваются делением.

Для небольших активных зон исследовательских реакторов возможно приближение $\Phi_1^+(r_n) = \text{const}$, и уравнение (3) переходит в

$$l_0 = \frac{1}{N_f} \sum_{n=1}^{N_f} \sum_{k=0}^{N_n} \frac{\lambda_k^{(n)}}{v_k^{(n)}}. \quad (4)$$

Поскольку время жизни поколения между двумя делениями в основном определяется тепловыми нейтронами, приходящими из тяжеловодного отражателя, то l_0 существенно зависит от их вклада в $k_{эф}$.

В исследовательском реакторе ПИК [4], строящемся в Гатчине ($P = 100$ МВт, твэлы типа СМ-2, объем легководной активной зоны $V_{а.з.} = 50$ л), вклад в $k_{эф}$ тепловых нейтронов, пришедших из тяжеловодного отражателя, невелик (около 3,3%). Поскольку кольцевая легководная активная зона реактора ПИК имеет толщину примерно 13 см, то ценность быстрых нейтронов $\Phi_1^+(r)$ заметно меняется по радиусу зоны r . В первой строке таблицы приведены расчетные значения l_0 с учетом и без учета $\Phi_1^+(r)$. Величина $\Phi_1^+(r)$ найдена путем решения по программе ПОЛЕ [5] сопряженных уравнений в рамках трехгрупповой диффузионной теории, константы для которой получены усреднением по энергетическому спектру нейтронов, предварительно определенному по программе OMEGA [6, 7]. Учет $\Phi_1^+(r)$ ($E > 5$ кэВ) уменьшает l_0 на 13%. Этого следовало ожидать, поскольку $\Phi_1^+(r)$ снижается на внешнем краю активной части зоны и уменьшает эффективную долю нейтронов, втекающих в тяжеловодный отражатель.

Хотя доля нейтронов, поступающих из отражателя в активную зону, в реакторе ПИК мала, именно они играют основную роль в затягивании времени цикла l_0 . Зазор между корпусом и обечайкой (0,4 см) можно заполнить раствором $\text{Gd}(\text{NO}_3)_3$ в тяжелой воде концентрацией 0,2 моль/л, который поглотит тепловые нейтроны тяжеловодного отражателя. В этом случае l_0 уменьшается в 4,5 раза (см. вторую строку таблицы). Значения l_0 , вычисленные по формулам (3), (4), в пределах статистической ошибки расчета не различаются.

В легкой воде тепловые нейтроны существуют значительно меньшее время, чем в тяжелой. Возврат нейтронов после замедления из легководного отражателя также мал. Поэтому при замене в реакторе ПИК тяжеловодного отражателя на легководный l_0 определяется фактически временем жизни нейтронов в ак-

Время жизни поколения нейтронов от деления до деления, 10^{-5} с

Реактор	Отражатель	Расчет по формуле	
		(4)	(3)
ПИК	D ₂ O	7,60±35	6,7±3
	D ₂ O* (экранирован)	1,41±7	1,49±9
FRM-II**	H ₂ O	1,404±7	1,42±2
	D ₂ O	69,6±1	68,7±1
	D ₂ O* (экранирован)	11,4±3	10,8±4
	H ₂ O	4,68±3	4,56±3

*Между внешним отражателем и активной зоной введен слой поглотителя тепловых нейтронов.

**В центре реактора частично опущен регулятор.

тивной зоне и легководной ловушке и близка к предыдущему значению (см. третью строку таблицы). В четвертой строке приведены результаты расчета времени жизни нейтронов для проектируемого в Мюнхене исследовательского реактора FRM II ($P = 20$ МВт, $V_{a,з} = 17,6$ л), имеющего компактную легководную водоалюминиевую активную зону, бериллиевую вставку в центре и тяжеловодный отражатель [8]. Вклад в цепную реакцию тепловых нейтронов, пришедших из отражателя, велик и составляет около 38%. Расчет выполнен для случая, когда внутренний регулятор (алюминиевая вставка, окруженная гафнием) введен в зону на глубину $h = -10,7$ см от центральной плоскости зоны. Значение $l_0 = 69 \cdot 10^{-5}$ с, вычисленное по формуле (4), почти не отличается от полученного по формуле (3). Это происходит потому, что на тонкой активной зоне FRM II (толщина кольца, содержащего топливо, ~4,5 см) ценность нейтронов деления меняется незначительно. Время жизни поколения мгновенных нейтронов в FRM II оказалось в 10 раз выше, чем в реакторе ПИК, из-за большого вклада в $k_{эф}$ тепловых нейтронов отражателя (38% вместо 3,3%).

В пятой строке таблицы даны результаты расчета для случая, когда тепловые нейтроны из тяжеловодного отражателя не возвращаются в активную зону. Для этого на границе с внешним отражателем введен слой поглотителя тепловых нейтронов. Для его моделирования принято, что в слое D₂O толщиной 0,4 см растворен Cd(NO₃)₂ концентрацией 0,2 моль/л. Тогда l_0 уменьшается более чем в 6 раз. Учет ценности быстрых нейтронов по-прежнему влияет на l_0 незначительно. Замена в отражателе тяжелой воды на легкую (без слоя поглотителя) снижает l_0 еще в 2,4 раза (см. шестую строку таблицы).

Расчеты в трехгрупповом диффузионном приближении по формуле (2) дают значения l_0 , близкие данным в таблице [9].

Результаты расчета, приведенные в таблице, показывают, что в отличие от энергетических реакторов время жизни поколения мгновенных нейтронов в исследовательских реакторах с тяжеловодным отражателем может значительно меняться. В зависимости от доли возвращающихся в зону тепловых нейтронов из отражателя значение l_0 может изменяться почти в 10 раз. Экспериментальные устройства в тяжеловодном отражателе (каналы, источники холодных и горячих нейтронов и т.д.) дополнительно уменьшают l_0 .

Большой эффект изменения l_0 в зависимости от положения внешних регуляторов следует учитывать при расчете кинетики исследовательского реактора с тяжеловодным отражателем.

Авторы благодарны Л.М. Котовой за расчеты $\Phi_1^*(r)$.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (код проекта 93-02-3863).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Weinberg A., Wigner E. The Physical Theory of Neutron Chain Reactors. Chicago Press, 1959 (Вейнберг А., Вигнер Е. Физическая теория ядерных реакторов. Пер. под ред. Я.В. Шевелева. М., Изд-во иностр. лит., 1961).
- Петров Ю.В., Сахновский Э.Г. Уравнения кинетики реактора с нелинейной обратной связью по температуре. — Атомная энергия, 1991, т. 71, вып. 4, с. 298—303.
- Золотухин В.Г., Майоров Л.В. Оценка параметров критичности реакторов методом Монте-Карло. Физика ядерных реакторов. Вып. 24. М.: Энергоатомиздат, 1984. 120 с.
- Ерыкалов А.Н., Колесниченко О.А., Коноплев К.А. и др. Реактор ПИК: Препринт ПИЯФ-1784, 1992. 42 с.

5. Болобов П.А., Шишков Л.К. Программа расчета двумерного реактора в диффузионно-групповом приближении. — Бюллетень центра данных ЛИЯФ, 1981, вып. 9, с. 3—39.
6. Seifert E. The Monte Carlo Criticality Code OMEGA. Rep. ZFK-364, 1978. 58 p.
7. Kuzminov V.V., Seifert E. A Fortran Version of the Monte Carlo Criticality Code OMEGA-KV. Preprint PNPI-1830, St. Petersburg, 1992. 34 p.
8. Böning K., Gläser W., Röhrmoser A. Physics and status project of the München reactor with compact core. — In: Proc. IRP Conf., Wajoming (USA), 1988, p. 11.
9. Ерыкалов А.И., Котова Л.М., Кузьминов В.В., Петров Ю.В. Особенности кинетики нейтронов исследовательских реакторов с тяжеловодным отражателем: Препринт ПИЯФ-2042, 1995. 18 с.

Поступило в Редакцию 20.06.95

УДК 621.039+546.161+546.175

РАВНОВЕСНОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ТРИТИЯ МЕЖДУ ЖИДКОСТЬЮ И ПАРОМ В СИСТЕМЕ АЗОТНАЯ КИСЛОТА—ВОДА

Жирнов Ю.П., Савостьянов С.И. (ГНЦ РФ ВНИИНМ им. А.А. Бочвара)

При экстракционной переработке отработавшего ядерного топлива ВВЭР большая часть содержащегося в нем трития переходит в азотнокислый раствор продуктов деления. Этот раствор обычно упаривается, а из соковых паров ректификацией получают слабокислый конденсат и регенерированную азотную кислоту. При этом полагают, что тритий находится в растворе в виде тритиевой воды, которая в процессах упаривания и ректификации распределяется между кубовым остатком, конденсатом и регенерированной кислотой [1, 2]. Физико-химическую основу этого распределения характеризуют данные о фазовом равновесии жидкость—пар в системах, имитирующих состав технологических растворов. В научно-технической литературе авторы таких данных не нашли. В связи с этим ниже приводятся данные о равновесном распределении трития в системе азотная кислота—вода.

Равновесие жидкость—пар определяли циркуляционным методом на приборе Отмера (конструкция и методика работы на нем описаны в работе [3]) при давлении 26,6, 53,3 кПа и атмосферном и концентрации трития $10^{-3} - 1$ Ки/л. В качестве исходных использовали дистиллированную воду, перегнанные водные растворы азотной кислоты и тритиевую воду марки «А» (ТУ9Г-976.82). Концентрацию кислоты находили титрованием щелочью, трития — радиометрически на установке РЖС-05 со сцинтилляционной жидкостью ЖС-8.

Для каждого состава жидкости проводили четыре параллельных определения равновесия. По среднеарифметическим значениям концентрации кислоты и трития рассчитывали концентрацию воды и затем коэффициенты распределения трития, воды и кислоты: $\alpha_T = \frac{T_y}{T_x}$; $\alpha_w = \frac{y_w}{x_w}$; $\alpha_k = \frac{y_k}{x_k}$, где T_y, y_w, y_k — концентрация трития (Ки/л), воды и кислоты (моль/л) в конденсате паровой фазы соответственно, T_x, x_w, x_k — в жидкости.

В таблице приведены данные, полученные для давления 53,3 кПа. В изученном диапазоне при увеличении или уменьшении давления α_T изменялась в пределах ее воспроизводимости ($\pm 7\%$ отн.). Видно, что при увеличении концентрации кислоты до 10—12 моль/л коэффициенты распределения всех компо-

Коэффициенты распределения компонентов в системе азотная кислота—вода, содержащей тритий

x_k	α_T	α_w	α_k
0	1,02	1,00	
4,35	1,09	1,15	0,04
6,18	1,15	1,21	0,12
8,22	1,24	1,29	0,20
9,90	1,30	1,32	0,36
11,9	1,29	1,27	0,64
13,9	1,18	1,15	0,87
15,2	1,02	0,86	1,09
16,7	0,90	0,76	1,11
18,0	0,83	0,45	1,20
19,9	0,75	0,31	1,14