

УДК 536.412:669.45'883

Плотность и тепловое расширение жидких сплавов системы Na–Pb с малым содержанием свинца*

Р.А. Хайрулин¹, С.В. Станкус¹, Р.Н. Абдуллаев²

¹*Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск*

²*Новосибирский государственный университет*

E-mail: kra@itp.nsc.ru

Методом просвечивания образцов узким пучком гамма-излучения измерены плотность и коэффициенты теплового расширения жидких натрия и сплавов натрий–свинец (2,50; 5,00; 7,50; 9,99 и 21,03 ат. % Pb) в интервале температур от линии ликвидуса до 950 К. Погрешность измерения плотности оценивается в $\pm 0,2-0,4$ %. Построены температурные и концентрационные зависимости термических свойств жидкой системы Na–Pb.

Ключевые слова: сплавы натрий–свинец, расплав, плотность, тепловое расширение.

Введение

Расплавы натрий–свинец с концентрацией до 10 ат. % Pb рассматриваются как перспективные теплоносители для ядерных реакторов на быстрых нейтронах [1]. Эти сплавы более пожаробезопасны по сравнению с чистым натрием. Авторы работы [1] установили, что расплавы, содержащие 10 ат. % Pb, не возгораются на воздухе при температурах до 700 °С, а сплавы с меньшим содержанием свинца перестают гореть при достижении этой концентрации. Однако многие термодинамические и кинетические свойства жидкой системы Na–Pb изучены недостаточно надежно и подробно, что затрудняет анализ перспектив использования этих расплавов в качестве охлаждающих жидкостей. В частности термические свойства расплавов, богатых натрием, экспериментально исследовались только в двух работах [2, 3]. Результаты этих работ по плотности жидкостей вблизи ликвидуса согласуются в пределах 1 %, однако расхождения по коэффициентам теплового расширения достигают 28 %. Между тем, надежные данные по тепловому расширению теплоносителей необходимы для проведения теплогидравлического моделирования работы реакторов, а также для прогнозирования последствий аварийных ситуаций, при которых отвод тепла из активной зоны происходит только за счет естественной конвекции теплоносителя.

Целью настоящей работы являлось получение надежных экспериментальных данных по плотности и тепловому расширению жидких натрия и сплавов натрий–свинец (2,50; 5,00; 7,50; 9,99 и 21,03 ат. % Pb) в интервале температур от ликвидуса до ~950 К.

* Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки России (соглашение 8073) и РФФИ (проект № 12-08-00192_a).

На основании полученных результатов построены температурные и концентрационные зависимости исследованных свойств для жидкой системы Na–Pb.

Методика и экспериментальная техника

Термические свойства расплавов измерялись методом просвечивания образцов узким пучком гамма-излучения. Экспериментальная установка и методика измерений подробно описаны в работах [4–6]. Плотность расплава ρ рассчитывается по формуле:

$$\rho(T) = \frac{\ln[J_0(T)/J(T)]}{\mu d(T)},$$

которая вытекает из экспоненциального закона ослабления гамма-излучения. Здесь T — температура, К; $J(T)$ и $J_0(T)$ — интенсивности пучка излучения, прошедшего через пустую и заполненную (с образцом) измерительную ячейку соответственно, с^{-1} ; $d(T)$ — длина ослабления излучения (внутренний диаметр тигля с поправкой на конечный диаметр пучка), м; μ — массовый коэффициент ослабления излучения для исследуемого материала (для сплавов он рассчитывается из массовых коэффициентов ослабления излучения для компонентов с помощью правила аддитивности), $\text{м}^2/\text{кг}$.

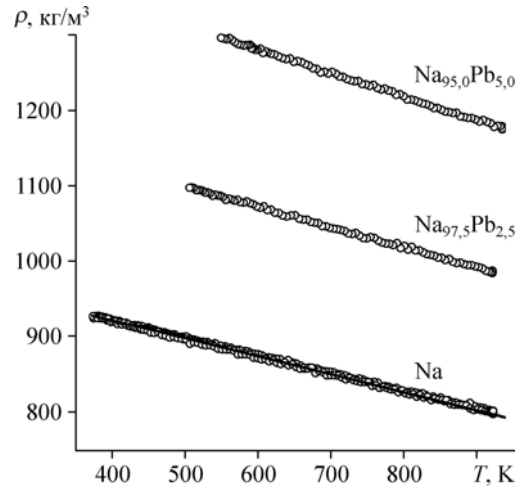
В качестве источника гамма-квантов (662 кэВ) использовалась ампула с изотопом цезий-137 активностью около 50 ГБк. Измерительные ячейки для образцов изготавливались из нержавеющей стали 12Х18Н10Т. Ячейка состояла из цилиндрического тигля высотой 60 мм, внутренним диаметром 50 мм и крышки с тонкостенной гильзой для хромель-алюмелевой термопары. Градуировка термопар проверялась по точкам кристаллизации чистых натрия, олова и сурьмы. Отклонения измеренных температур затвердевания металлов от справочных данных не превышали 0,3–1,0 К.

Свинец (чистота 99,99 %), использовавшийся для приготовления сплавов, первоначально переплавлялся в атмосфере чистого аргона (99,992 об. %). После этого поверхность слитков очищалась от пленок окислов. Натрий (99,996 %) подвергался дополнительной очистке методом дистилляции в вакууме. Массовые коэффициенты ослабления излучения компонентов измерялись на специально изготовленных для этой цели твердых образцах с хорошо известными размерами. Массы навесок натрия и свинца (20–120 г), необходимые для расчета состава сплавов, измерялись на аналитических весах с точностью до 2–3 мг. Составной образец помещался в тигель, так что свинец располагался в его нижней части. Все эти операции проводились в атмосфере аргона. Затем тигель эвакуировался и герметизировался*. Ячейка устанавливалась в печь гамма-плотномера. Печь также эвакуировалась и заполнялась аргоном до давления 0,1 МПа. Образец плавился, нагревался до 950 К и выдерживался при этой температуре несколько часов с целью гомогенизации. Гомогенность расплава контролировалась по измерениям коэффициента ослабления гамма-излучения в образце на различных высотах. При необходимости проводилось дополнительное перемешивание расплава путем встряхивания ячейки. Затем в ходе охлаждения и нагрева определялась температурная зависимость плотности жидкого сплава. Скорость нагрева–охлаждения составляла 2–3 К/мин. Согласно оценкам, ошибка измерения плотности не превышала 0,2–0,4 %. Эти оценки были подтверждены сопоставлением экспериментальных результатов для жидкого натрия с литературными данными (см. ниже).

* Авторы выражают благодарность Н.И. Логинову и В.А. Морозову (ГНЦ РФ – ФЭИ, г. Обнинск) за помощь в подготовке образцов.

Рис. 1. Температурные зависимости плотности жидкого натрия и сплавов натрий–свинец, содержащих 2,50 и 5,00 ат. % Pb.

Символы — данные настоящей работы, линия — рекомендуемая температурная зависимость плотности жидкого Na из работы [7].



Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведены экспериментальные данные по плотности Na и некоторых сплавов Na–Pb в жидком состоянии. В изученных интервалах плотность расплавов линейно, или слабо нелинейно (для сплава, содержащего 21,03 ат. % Pb) зависит от температуры:

$$\rho(T) = \rho(T_L) + A(T - T_L) + B(T - T_L)^2, \quad (1)$$

T_L — температура ликвидуса. Коэффициенты полиномов (1) приведены в таблице. Максимальное отклонение экспериментальных точек для жидкого Na от температурной зависимости, рекомендованной в работе [7], составляет 0,1 % вблизи точки ликвидуса и 0,3–0,4 % при 950 К.

На рис. 2 и 3 представлены концентрационные зависимости мольного объема V и объемного коэффициента термического расширения $\beta = -(\partial\rho/\partial T)/\rho$ для жидкой системы Na–Pb, построенные по данным настоящей работы. В интервале 0–21 ат. % Pb мольный объем практически линейно изменяется с атомной концентрацией X , однако зависимость $V(X)$ очень сильно отклоняется от правила аддитивности для идеальных растворов. При 700 К и 21,03 ат. % Pb относительная величина избыточного мольного объема $V_{\text{ex}}/V = -16,8\%$.

Наши данные по мольным объемам расплавов находятся в хорошем согласии с величинами V из работ [2, 3]: расхождения лежат в пределах 0,3–1,0 %, что практически не превосходит суммарных погрешностей измерений. Различия в коэффициентах термического расширения более существенны. Согласно нашим измерениям, величина β для жидкой системы сначала убывает с ростом содержания свинца, однако затем резко возрастает при 21,03 ат. % Pb. Значения β из работ [2, 3] нерегулярным образом меняются с концентрацией. По нашему мнению, эти данные по коэффициентам термического расширения отягощены существенными погрешностями.

Таблица

Данные по плотности жидких сплавов Na–Pb

Состав, ат. % Pb	T_L , К	$\rho(T_L)$, кг·м ⁻³	$-A$, кг·м ⁻³ ·К ⁻¹	B , 10 ⁻⁴ кг·м ⁻³ ·К ⁻²
0	371,0	927,3	0,232	0
2,50	502,5	1 098,4	0,270	0
5,00	547,0	1 297,4	0,311	0
7,50	571,9	1 512,5	0,363	0
9,99	594,9	1 733,1	0,412	0
21,03	659,5	2 865,1	0,885	2,945

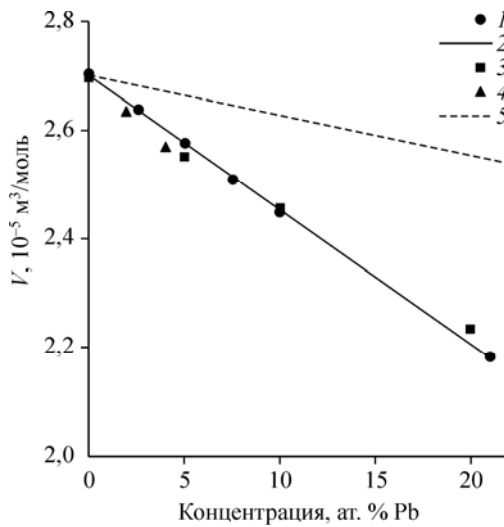


Рис. 2. Концентрационная зависимость мольного объема жидкой системы Na–Pb при 700 К.

1 — экспериментальные данные, 2 — аппроксимация экспериментальных данных полиномиальной зависимостью, 3 — данные работы [2], 4 — данные работы [3], 5 — концентрационная зависимость мольного объема для идеальной системы.

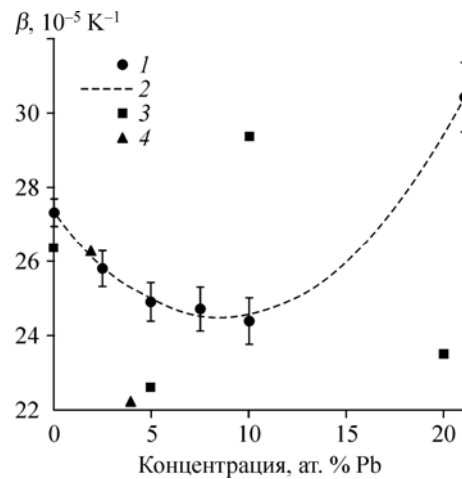


Рис. 3. Концентрационная зависимость объемного коэффициента термического расширения.

1 — экспериментальные данные, 2 — аппроксимация экспериментальных данных полиномиальной зависимостью, 3 — данные работы [2], 4 — данные работы [3].

Список литературы

1. Efanov A.D., Loginov N.I., Morozov V.A., Morozov A.V., Mikheyev A.S. Investigation of thermodynamic properties of sodium–lead system // *J. Phys.: Conf. Ser.* 2008. Vol. 98, Pt 3. Paper No 032013. 4 p.
2. Ruppertsberg H., Jost J. Determination of the heat capacity of liquid alloys according to the $(\partial p/\partial T)_p$ procedure: Pb/Na // *Thermochim. Acta.* 1989. Vol. 151. P. 187–195.
3. McAlister S.P. The compressibility of liquid sodium alloys // *Philos. Mag.* 1972. Vol. 26. P. 853–863.
4. Хайрулин Р.А., Станкус С.В., Кошелева А.С. Взаимная диффузия в расплавах системы олово–свинец эвтектического и околоэвтектического составов // *Теплофизика высоких температур.* 2008. Т. 46, № 2. С. 239–245.
5. Станкус С.В., Хайрулин Р.А. Измерение термических свойств платины в интервале температур 293–2300 К методом проникающего излучения // *Теплофизика высоких температур.* 1992. Т. 30, № 3. С. 487–494.
6. Stankus S.V., Tyagel'sky P.V. Thermal properties of Al_2O_3 in the melting region // *Int. J. Thermophys.* 1994. Vol. 15. P. 309–316.
7. **Теплофизические свойства щелочных металлов** / Э.Э. Шпильрайн, К.А. Якимович, Е.Е. Тоцкий и др. М.: Издательство стандартов, 1970. 487 с.

Статья поступила в редакцию 8 августа 2012 г.