

# РАССЕЯНИЕ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ ВОДОЙ В ОБЛАСТИ КРИТИЧЕСКОГО СОСТОЯНИЯ

**Ю.В. Лисичкин\*, А.Г. Новиков\*\***

*\* Обнинский институт атомной энергетики, Обнинск*

*\*\* ГНЦ РФ-Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск*



Проводится анализ результатов экспериментально-расчетных исследований дважды дифференциальных сечений (ДДС) рассеяния медленных нейтронов образцами воды, находящейся в под- и надкритическом состояниях. Экспериментальная часть работы выполнялась на двойных импульсных нейтронных спектрометрах по времени пролета ДИН-1М и ДИН-2ПИ, установленных соответственно на импульсных реакторах ИБР-30 и ИБР-2 Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка (ОИЯИ, г. Дубна). Показано, что результаты эксперимента удается описать в предположении, что вода в околокритическом состоянии представляет собой своеобразную смесь двух компонент: газоподобной, по своим свойствам близкой к идеальному газу мономерных молекул воды, и жидкоподобной, ничем принципиально не отличающейся от обычной воды. Из экспериментальных данных получена зависимость относительных концентраций газо- и жидкоподобной компонент от общей плотности воды. Дается физическая интерпретация указанных результатов на основе теории гетерофазных флуктуаций Я.И.Френкеля и термодинамики надкритического состояния вещества и закритических фазовых переходов, развитых в работах В.К.Семенченко. Проводится также сравнение полученных данных с другими экспериментальными результатами.

## ВВЕДЕНИЕ

Систематические экспериментально-расчетные исследования рассеяния медленных нейтронов водой, выполненные ранее с использованием спектрометров ДИН-1М [1] и ДИН-2ПИ [2], установленных соответственно на реакторах ИБР-30 и ИБР-2 ОИЯИ (г. Дубна), показали, в частности, что экспериментальные данные, полученные для под- и надкритического состояний (далее околокритического состояния) воды, наилучшим образом описываются на основе так называемой двухкомпонентной (двухфазной) модели [3,4]. При этом одна компонента (фаза) демонстрирует газоподобное поведение молекул воды, а другая – жидкоподобное (флюидное). На момент выполнения указанных работ предположение о двухкомпонентной структуре околокритического состояния воды во многом воспринималось скептически. И даже в более поздних публикациях, где цитируются результаты наших исследований, их интерпретация не является вполне адекватной (см., например, [5,6]). Однако к настоящему времени в целом ряде экспериментальных, теоретических и расчетных (главным образом, выполненных методом молекулярной динамики) работ получены новые указания о сложном характере локальной

структуры воды в различных состояниях (см., например, обзор [7]). В частности, активно обсуждается представление о том, что вблизи известной (при  $T=647$  К,  $P=22$  МПа,  $\rho \approx 0,328$  г/см<sup>3</sup>) критической точки вода является флуктуирующей смесью жидкообразной и газообразной фаз. При этом предполагается, что в основе проявления обсуждаемых необычных свойств воды лежит специфическая «двухъямная» форма потенциала межмолекулярного взаимодействия.

В последние годы к свойствам надкритической воды начинает проявляться все более активный интерес. Появляются новые работы, в которых вода в надкритическом состоянии исследуется как экспериментально (методом рентгеновской [8,9] и нейтронной [10] дифракции, неупругого [11] и малоуглового [12] рассеяния нейтронов), так и методом молекулярно-динамического моделирования [5,6]. Но возрастающий интерес к воде, находящейся в околокритическом состоянии, обусловлен не только задачами физики конденсированных сред. Потребности современного реакторостроения, где вода широко используется в качестве замедлителя и теплоносителя в состоянии, близком к критическому (а в ряде возможных аварийных ситуаций и в надкритическом состоянии), также стимулируют повышенное внимание к соответствующим исследованиям [13]. В этой связи мы сочли целесообразным вернуться к экспериментальным данным, полученным нами ранее на околокритической воде, и провести их дополнительный анализ. На основе результатов наших работ [3,4] и систематизации полученной разными методами и авторами экспериментальной информации о физическом состоянии воды в надкритической области мы построили соответствующую фазовую Р-Т-диаграмму, которая обсуждается в свете предложенной нами двухкомпонентной модели надкритической воды и существующих теоретических представлений. Используя количественные параметры двухкомпонентной модели, мы оценили энтальпию воды при надкритической температуре  $t=400^\circ\text{C}$  как функцию давления, которая оказалась в удовлетворительном согласии с известными данными.

## АНАЛИЗ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

Методика проведения нейтронно-динамического эксперимента на образцах воды, находящейся в околокритическом состоянии, используемое при этом экспериментальное оборудование, а также первичная обработка результатов и их частичный анализ уже были подробно описаны в [3,4,14]. Здесь мы лишь напомним, что обсуждаемые экспериментальные данные были получены при надкритической температуре  $t \sim 400^\circ\text{C}$  в интервале плотностей воды от близких к критической ( $\rho \sim 0,317$  г/см<sup>3</sup>) до плотностей, при которых водяной пар близок к состоянию идеального газа мономерных молекул ( $\rho \sim 0,005$  г/см<sup>3</sup>). Эти данные были дополнены двумя точками на линии насыщения при температурах, несколько ниже критической:  $t \sim 327^\circ\text{C}$  ( $\rho \sim 0,65$  г/см<sup>3</sup>) и  $t \sim 360^\circ\text{C}$  ( $\rho \sim 0,53$  г/см<sup>3</sup>).

Анализ результатов проводился на основе адекватного сопоставления экспериментальных ДДС с расчетными, полученными исходя из определенной структурно-динамической модели околокритического состояния воды. Для расчетов использовался модернизированный комплекс программ SLOWN [15], позволяющий, в частности, учитывать эффекты конечного разрешения спектрометра, ослабление потока однократно рассеянных нейтронов в образце, вклады многократного и многофононного рассеяния.

На первом этапе анализа апробировались следующие структурно-динамические модели исследуемого рассеивателя: 1) модель «жидкости», 2) модель идеального газа мономеров  $\text{H}_2\text{O}$  и 3) модель идеального газа димеров  $(\text{H}_2\text{O})_2$ . На рис.1 представлено сравнение части полученных нами экспериментальных и расчетных данных. Видно, что ни одна из использованных моделей не описывает приемлемым образом экспериментальные ДДС во всей исследованной нами области плотностей. Вместе с тем, при плотностях, не превышающих  $\rho \sim 0,02$  г/см<sup>3</sup>, эксперимент удовлетворительно согласуется с

моделью идеального газа свободно вращающихся мономерных молекул  $H_2O$ , тогда как при плотностях  $\rho > 0.5 \text{ г/см}^3$  адекватной оказывается модель «жидкости». При промежуточных плотностях  $0.02 \leq \rho \leq 0.5 \text{ г/см}^3$  экспериментальные кривые проходят в среднем между расчетами, полученными по моделям «жидкости» и идеального газа мономеров  $H_2O$  (свободных ротаторов). Это обстоятельство навело нас на предположение, что в области промежуточных плотностей водяной пар в околокритическом состоянии можно рассматривать как суперпозицию двух упомянутых выше компонент. Поэтому дальнейший анализ проводился на основе двухкомпонентной (двухфазной) модели околокритического состояния воды, т.е. на предположении о том, что в области промежуточных плотностей выше и ниже критической точки вода представляет собой смесь двух компонент (фаз) - жидкоподобной (флюида) и газоподобной (идеальный газ свободных ротаторов). При этом предполагалось, что относительная доля каждой компоненты (фазы) должна изменяться в зависимости от общей плотности ис-

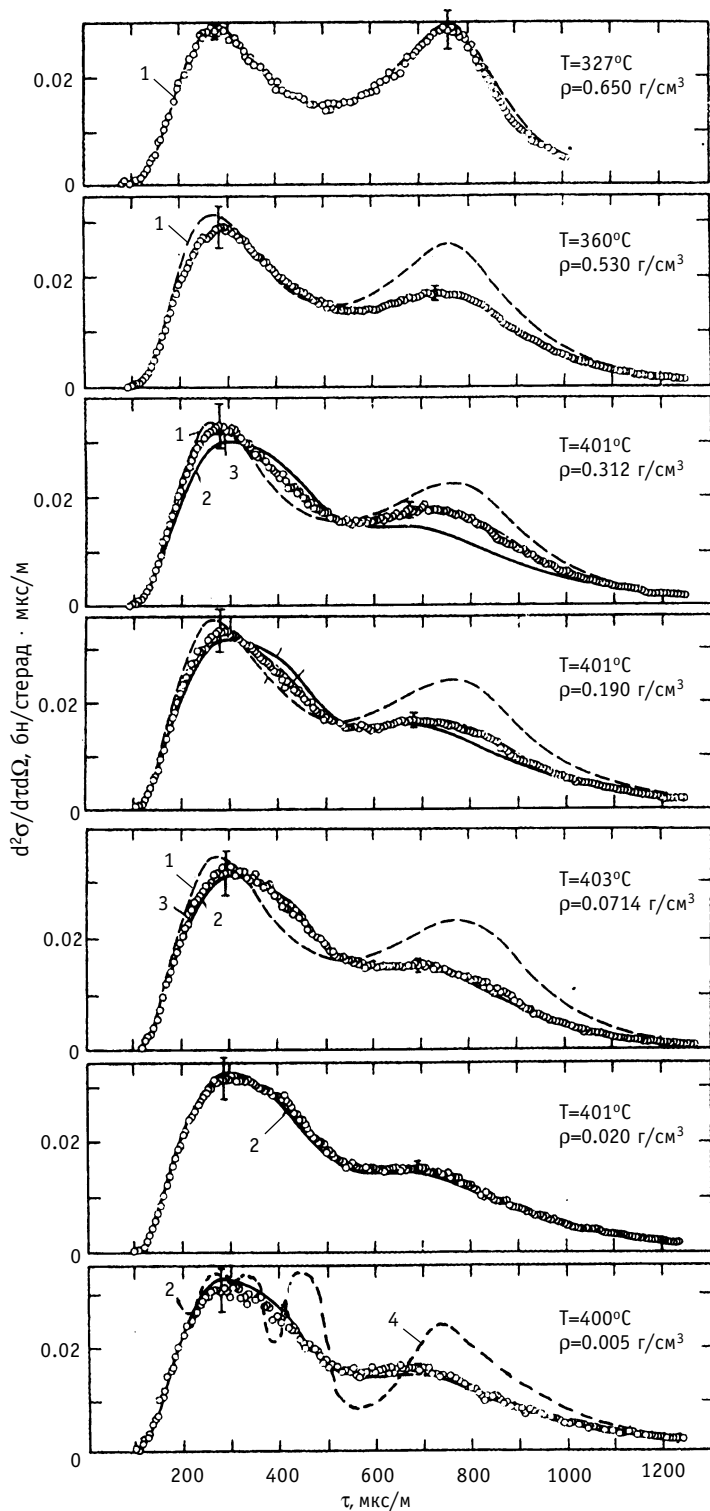


Рис. 1. Экспериментальные абсолютные дважды дифференциальные сечения рассеяния нейтронов водой, находящейся в околокритическом состоянии. Начальная энергия нейтронов  $E_0 = 7.5 \text{ мэВ}$ , угол рассеяния  $\theta = 38^\circ$ ,  $\tau$  – пролетное время нейтронов в мкс/м. Расчеты по моделям 1 – жидкости, 2 – идеального газа мономеров воды, 3 – «двухфазной» модели, 4 – идеального газа димеров воды

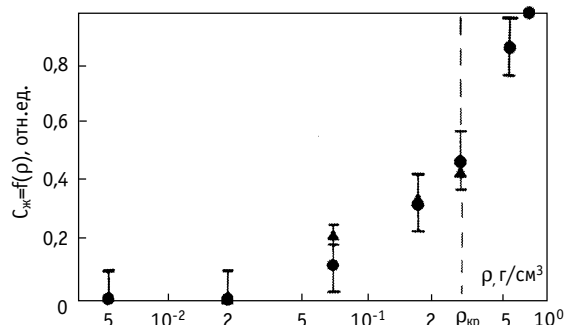


Рис. 2. Зависимость относительной концентрации "жидкой фазы"  $C_{ж}$  от плотности  $\rho$  водяного пара: ● - результаты анализа полных ДДС рассеяния; ▲ - результат анализа трансляционной части ДДС рассеяния

во всем диапазоне существования жидкой фазы воды (на линии насыщения) [16]. При этом для расчета трансляционной (квазиупругой) части  $(\text{ДДС})_{ж}$  использовались данные из [17]. Неупругая часть  $(\text{ДДС})_{ж}$  рассчитывалась на основе обобщенного частотного распределения (ОЧР) молекул воды, температурная зависимость которого была получена и проанализирована в [18,19]. ОЧР для надкритических температур получалось экстраполяцией в область этих температур результатов работы [18], которая, в частности, показала достаточно слабую температурную зависимость ОЧР воды для температур выше 500 К.

$(\text{ДДС})_{г}$  рассчитывались по модели идеального газа свободно вращающихся мономеров  $\text{H}_2\text{O}$  [20]. При этом предполагалось, что закон рассеяния, соответствующий трансляционной (квазиупругой) компоненте  $(\text{ДДС})_{г}$  представляет собой кривую гауссовской формы; ОЧР, необходимое для расчета неупругой составляющей  $(\text{ДДС})_{г}$ , конструировалось в предположении, что поступательные, вращательные и внутримолекулярные движения молекул воды являются некоррелированными. Вращательное движение свободной молекулы воды рассматривалось как суперпозиция независимых движений трех линейных ротаторов, каждому из которых соответствует момент инерции относительно одной из главных осей инерции молекулы воды. Таким образом, вращательная часть ОЧР молекулы  $\text{H}_2\text{O}$  оказывается суперпозицией трех кривых, каждой из которых приписывается «вес», обратно пропорциональный массе, с которой молекула участвует во вращательном движении вокруг соответствующей главной оси инерции [20]

В результате разложения экспериментальных ДДС на жидкоподобную и газоподобную составляющие были получены оптимальные значения  $C_{ж}$  и  $C_{г}$  (рис. 2). Согласие экспериментальных ДДС с расчетами, выполненными по двухкомпонентной модели околокритического состояния воды, использующей оптимальные значения  $C_{ж}$  и  $C_{г}$ , как демонстрирует рис.1, достаточно хорошее. Из этого рисунка также видно, что заметное влияние на рассеивающие свойства воды газоподобная компонента начинает оказывать еще в подкритическом состоянии ( $T=633\text{ К}$ ,  $\rho=0,53\text{ г/см}^3$ ). При  $\rho \approx 0,02\text{ г/см}^3$  практически все молекулы уже находятся в газоподобной фазе (компоненте), а жидкоподобная компонента практически исчезает. При критической плотности ( $\rho \approx 0,3\text{ г/см}^3$ ) обе компоненты (фазы) содержат примерно одинаковое число молекул.

Следует отметить, что различие между рассеянием медленных нейтронов жидкоподобной и газоподобной компонентами (фазами) в условиях нашего эксперимента наиболее рельефным образом проявляется в трансляционной (квазиупругой) части ДДС (на рис.1 это область второго «горба (пика)», соответствующего пролетному времени нейтронов  $t \sim 800\text{ мкс/м}$ ). В этой связи для дополнительной проверки двухкомпонентной модели околокритического состояния воды была специальным образом проанализирована именно трансляционная часть экспериментальных ДДС [21]. Выделение этой час-

следуемой системы. Таким образом, согласно данной модели ДДС (или любую его аддитивную часть) можно представить в виде

$$\text{ДДС} = C_{ж}(\text{ДДС})_{ж} + C_{г}(\text{ДДС})_{г}, \quad (1)$$

где  $C_{ж} + C_{г} = 1$ ;  $C_{ж}$ ,  $C_{г}$  - соответственно относительные доли жидкоподобной и газоподобной компонент.

$(\text{ДДС})_{ж}$  рассчитывалась на основе модели автокорреляционной функции атома водорода в жидкой воде, которая была разработана нами при анализе экспериментов, выполненных во

ти ДДС и ее последующий анализ проводились с использованием комплекса программ SLOWN методически, аналогично работе [20]. При этом, кроме моделей идеального газа мономеров и димеров проверялись также модели Г.В. Юхневича и др.[22] (согласно которым при плотностях  $\rho \leq 0,1$  г/см<sup>3</sup> вода представляет собой смесь мономеров и димеров), М.А. Стыриковича и др.[23] (в которых предполагается, что при увеличении плотности водяного пара наряду с димерами могут возникать также тримеры, тетрамеры и т. д. или их смеси, а взаимодействие между этими «полимерными» молекулами отсутствует). Однако оказалось, что в области плотностей  $\rho \leq 0,02$  г/см<sup>3</sup> водяной пар практически ведет себя как идеальный газ мономеров (свободных ротаторов) Н<sub>2</sub>О. Дальнейшее увеличение плотности приводит к проявлению межмолекулярного взаимодействия, приводящего, в частности, к сужению естественной полуширины трансляционной части ДДС, но этот процесс не может быть описан ни одной из цитированных выше моделей, поскольку отмеченное сужение экспериментальной полуширины с ростом плотности происходит медленнее, чем этого требуют обсуждаемые модели. Наибольшую адекватность экспериментальным данным при описании трансляционной части ДДС опять-таки продемонстрировала двухкомпонентная модель. При этом относительные доли жидкоподобной  $C_{\text{ж}}$  и газоподобной  $C_{\text{г}}$  компонент, полученные оптимальной подгонкой модельных и экспериментальных кривых трансляционной части ДДС, оказались близки к тем значениям, которые были найдены посредством анализа «полных» ДДС рассеяния (см. рис.2).

## ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

По нашему мнению, представленные выше экспериментальные результаты физически можно разумно интерпретировать, исходя из теории гетерофазных флуктуаций Я.И. Френкеля [24] и термодинамики надкритического состояния вещества и закритических фазовых переходов, развитой в работах В.К. Семенченко с сотрудниками [25]. Согласно теории Френкеля, в термодинамически равновесной жидкости даже в состоянии, далеком от критического, существует конечная вероятность появления флуктуаций плотности, которые могут быть названы гетерофазными и представляют собой зародыши новой фазы. Условия развития гетерофазных флуктуаций улучшаются по мере приближения к критическому состоянию, т.к. уменьшаются различия в плотностях фаз и поверхностное натяжение на границе между ними. В критической точке граница эта полностью исчезает, и среда становится гомогенной.

Независимые экспериментальные сведения о микроскопическом состоянии надкритической воды довольно ограничены. Тем не менее, признаки присутствия газоподобной и жидкоподобной компонент в надкритической воде были отмечены еще в давних работах С.А. Ухолина и Г.С. Ландсберга [26], а затем Е. Франка [27], Ю.Е. Горбатого с сотрудниками [28], выполненных оптическими методами. Из этих данных следовало, что переход через критическую точку в воде не приводит к заметным перестройкам межмолекулярного взаимодействия (это следует также и из результатов данной и других цитированных выше наших работ). Отсюда можно утверждать, что и в надкритическом состоянии (по крайней мере, не слишком далеко от критической точки) в определенной области термодинамических переменных вода продолжает оставаться смесью двух компонент (фаз), сосуществующих, по-видимому, в форме микрогетерогенностей флуктуационного характера. Эта область по терминологии В.К. Семенченко получила название мезофазы. Систематизируя имеющиеся в нашем распоряжении результаты настоящей работы и литературные данные о надкритическом состоянии воды, мы попытались примерно оценить на фазовой диаграмме воды, приведенной на рис. 3, контуры этой области. Критерием оценки (условных) границ мезофазы (кривые 3а и 3в) служили данные об «иставивании» экстремумов ряда физических свойств воды, характерных для

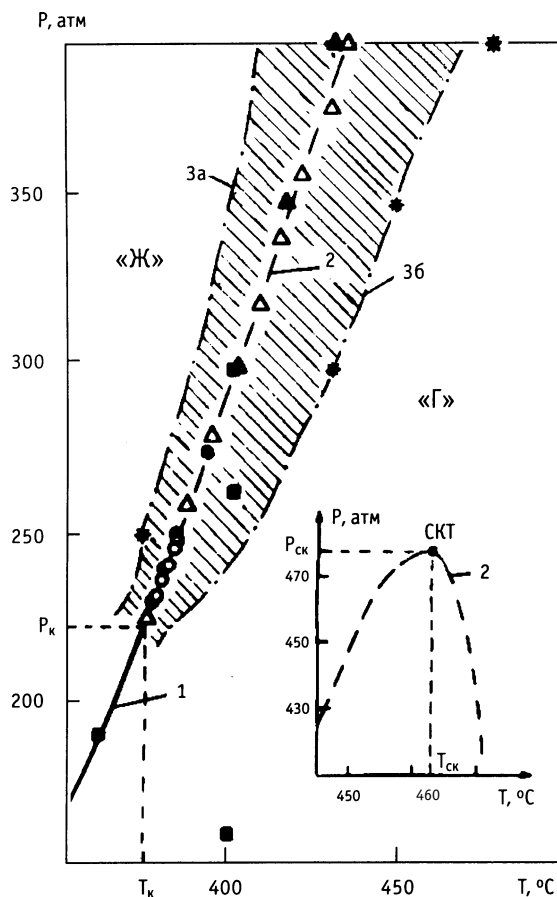


Рис. 3. P-T-диаграмма для воды в надкритической области: 1 – линия насыщения; 2 – кривая за критических фазовых переходов и сверхкритическая точка по В.К. Семенченко [33]; положения максимумов: \* – теплоемкости  $c_v$  [29], • – теплоемкости  $c_p$  [30], ◻ – теплопроводности [31]; состояния воды: \* – принадлежащие переходной области по результатам [32], ■ – исследованные в нашем эксперименте; линии 3а и 3б – условные границы переходной области по данным [29,30]

ческому смыслу кривая 2 является линией, на которой перестройка структуры вещества путем гетерофазных флуктуаций достигает своего максимального развития. Такую кривую можно рассматривать в качестве условной границы перехода. Именно в этом смысле она и показана на рис.3. Как следует из данных нашего эксперимента, переходной области принадлежат результаты при плотностях  $\rho \approx (0,1-0,5) \text{ г/см}^3$ , а кривая 2 соответствует состоянию вещества, когда приблизительно половина молекул водяного пара находится в жидкоподобном и столько же в газоподобном состояниях. Что же касается вопроса о существовании сверхкритической точки, которой, согласно [33], должна заканчиваться линия за критических фазовых переходов, то он требует дополнительного экспериментального исследования.

Полученные результаты важно оценить и с теплофизической точки зрения. В качестве иллюстрации применения обоснованного в настоящей работе представления о двухкомпонентной структуре надкритического состояния воды для анализа ее теплофизических свойств мы оценили энтальпию водяного пара при  $t=400^\circ \text{C}$  как функцию дав-

околокритического состояния. При этом нами использовались экспериментальные результаты по теплоемкости  $C_v$ ,  $C_p$  [29,30] и теплопроводности  $\lambda$  [31] при сверхкритических параметрах воды, а также результаты оптических экспериментов Ю.Е. Горбатого с сотрудниками [32]. Область термодинамических переменных слева от кривой 3а соответствует жидкоподобному, а справа от кривой 3б – газоподобному состояниям. Согласно [33], в надкритической области в пределах существования мезофазы может быть выделена некоторая кривая (кривая 2 на рис.3), которая является продолжением линии насыщения (кривая 1 на рис.3) за критическую точку и вплоть до  $t \sim 450^\circ \text{C}$  и  $P=420 \text{ атм}$  описывается линейной зависимостью. Затем эта кривая становится нелинейной и проходит через максимум (см. вставку к рис.3), именуемый авторами сверхкритической точкой, выше которой, по их мнению, вещество находится только в газообразном состоянии. На рис.3 показаны также положения максимумов теплопроводности  $\lambda$  [31], теплоемкостей  $C_p$  и  $C_v$  [29,30]. Видно, что эти положения практически находятся на кривой 2, которую авторы [33] называют линией за критических фазовых переходов и которая делит область мезофазы приблизительно пополам. По своему физи-

ления, исходя из соотношения

$$I_{\text{пар}}(P,T) = C_{\text{ж}} I_{\text{ж}}(P,T) + C_{\text{г}} I_{\text{г}}(P,T), \quad (2)$$

где  $I_{\text{ж}}(P,T)$  и  $I_{\text{г}}(P,T)$  – соответственно, жидкоподобная и газоподобная составляющие энтальпии  $I_{\text{пар}}(P,T)$ ,  $C_{\text{ж}}$  и  $C_{\text{г}}$  были определены выше. Возможность представления энтальпии водяного пара линейной комбинацией (2) следует из общих формул для термодинамических функций (см., например, [34]), мультипликативности соответствующей статистической суммы (в пренебрежении взаимодействия поступательных, вращательных, и меж- и внутримолекулярных движений) и других общепринятых в рассматриваемом аспекте приближений. Жидкоподобная составляющая энтальпии  $I_{\text{ж}}(P,T)$  находилась путем экстраполяции данных М.П. Вукаловича [35] по энтальпии воды на линии насыщения к температуре  $t=400^\circ\text{C}$ , что дало значение около 520 ккал/кг, которое считалось постоянным во всем исследованном интервале плотностей. Газоподобная составляющая  $I_{\text{г}}(P,T)$  находилась следующим образом. Вначале линейной экстраполяцией данных [35] по энтальпии перегретого пара при  $t=400^\circ\text{C}$  из области малых давлений ( $P \leq 15$  атм) к высоким давлениям ( $P \approx 300$  атм) была оценена энтальпия «идеального» газа  $H_2O$   $I_{\text{идг}}(P,T)$  (см. рис. 4). Затем с учетом данных из [36] вводилась поправка на отличие плотности газоподобной компоненты  $\rho_{\text{г}}$  от плотности идеального газа  $\rho_{\text{идг}}$  в виде  $\alpha = \rho_{\text{г}}/\rho_{\text{идг}}$ . Окончательно газоподобная составляющая  $I_{\text{г}}(P,T)$ , входящая в соотношение (2), определялась по формуле

$$I_{\text{г}}(P,T) = \alpha * I_{\text{идг}}(P,T). \quad (3)$$

Сравнение рассчитанной изложенным выше образом энтальпии водяного пара с табличными данными приведено на рис. 4, который демонстрирует вполне удовлетворительное согласие между ними. Этот факт свидетельствует о том, что использование двухкомпонентной модели надкритического состояния воды и ее количественных параметров, полученных из анализа результатов нейтронного эксперимента, по крайней мере, не противоречит имеющимся данным по такой важной теплофизической характеристике как энтальпия. Это наводит на мысль, что представленная в настоящей работе структурно-динамическая модель надкритической воды заслуживает более глубокого экспериментального и расчетно-теоретического исследования.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполненный нами анализ экспериментов по неупругому рассеянию нейтронов на околокритической воде подтвердил наличие в ней определенной области термодинамических состояний, называемой мезофазой, в которой вещество находится в переходном состоянии, обладая как газоподобными, так и жидкоподобными свойствами, что

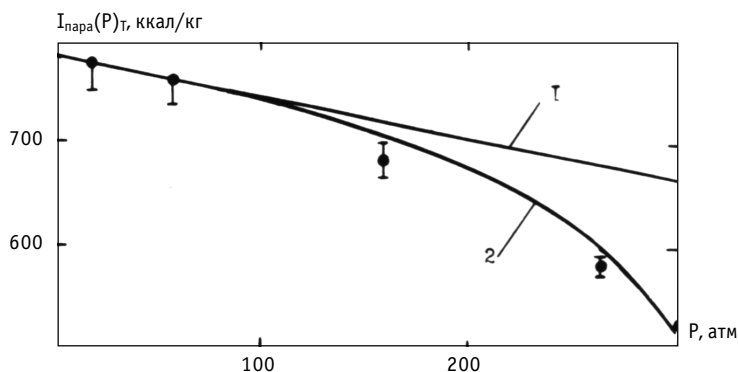


Рис. 4. Энтальпия водяного пара как функция давления при температуре  $t=400^\circ\text{C}$ : 1 - энтальпия «идеального» газа  $I_{\text{идг}}(P)$ , 2 - табличная кривая, • - результат настоящей работы

является следствием существования в этих состояниях сгущений и разрежений плотности флуктуационного характера.

Предложенная нами двухкомпонентная модель околокритического состояния воды может быть использована для расчета как нейтронно-физических, так и термодинамических характеристик этой воды, что будет полезным в связи с широким применением воды, находящейся в околокритическом состоянии, в энергетических ядерных реакторах в качестве замедлителя нейтронов и теплоносителя.

Работа выполнена при поддержке ГНТП «Актуальные направления в физике конденсированных сред», направление «Нейтронные исследования».

Авторы выражают благодарность проф. П.Л. Кириллову за внимание к работе и полезные дискуссии.

## Литература

1. Абрамов А.В., Благовещенский Н.М., Блинов Б.К. и др. Спектрометры ДИН на пучках ИБР-2, ИБР-30. Основные характеристики и направления исследований // Атомная энергия. - 1989. - Т.66. - №5. - С. 316.
2. Глазков Ю.Ю., Данилкин С.А., Лисичкин Ю.В. и др. Исследования конденсированных сред с помощью медленных нейтронов // Атомная энергия. - 1996. - Т.80. - №5. - С. 391.
3. Лисичкин Ю.В., Новиков А.Г., Фомичев Н.К. Взаимодействие медленных нейтронов с водой в околокритической и надкритической области и механизм перехода жидкость-пар // Ж. физ. химии. - 1985. - Т.59. - №7. - С. 1671.
4. Фомичев Н.К., Лисичкин Ю.В., Новиков А.Г. Рассеяние медленных нейтронов надкритической водой и эффекты тройных корреляций. «Физика жидкого состояния». - Киев: Вища школа, 1987. - Вып. 15. - С. 91.
5. Cummings P., Cochran H., Simonson J., Mesmer R., Karaborni S. Simulation of supercritical water and supercritical aqueous solutions // J. of Chem. Phys. - 1991. - V. 94. - №8. - P. 5606.
6. Guissami Y., Guillot B. A computer simulation study of the liquid-vapor coexistence curve of water // J. of Chem. Phys. - 1993. - V.98. - №10. - P. 8221.
7. Mishima O., Stanley H.E. The relationship between liquid, supercooled and glassy water // Nature. - V.396. - № 6709. - P. 329.
8. Yamanaka K., Yamaguchi T., Wakita H. Structure of water in liquid and supercritical states by rapid X-ray diffractometry // J. of Chem. Phys. - 1994. - V.101. - №11. - P. 9830.
9. Okhulkov A.V., Demianets Yu.N., Gorbaty Yu.E. X-ray scattering in liquid water at pressures of up to 7.7 kbar. Test of fluctuation model // J. of Chem. Phys. - 1994. - V.100. - №2. - P.1578.
10. Tromp R., Postorino P., Neilson G., Ricci M., Soper A. Neutron diffraction studies of H<sub>2</sub>O/D<sub>2</sub>O at supercritical temperatures. A direct determination of  $g_{HH}(R)$ ,  $g_{OH}(R)$  and  $g_{OO}(R)$  // J. of Chem. Phys. - 1994. - V. 101. - №7. - P. 6210.
11. Uffindell C., Kolesnikov A., Li J.-C., Mayers J. Inelastic neutron scattering study of water in the sub- and supercritical region // Physica B. - 2000. - V.276-278. - P.444.
12. Bonetti M., Romet-Lemonne G., Calmettes P., Bellisent-Funel M.-C. Small-angle neutron scattering from heavy water in the vicinity of the critical point // J. Chem. Phys. - 2000. - V.112. - №1. - P. 268.
13. Proc. of the First Intern. Symp. on Supercritical Water-cooled Reactors. Design and Technology (The University of Tokyo, Japan November 6-9, 2000).
14. Лисичкин Ю.В., Новиков А.Г., Пэдуреану И., Ротареску Г., Фомичев Н.К. Рассеяние медленных нейтронов тяжелой водой в интервале температур (23-200)°C: Сообщение ОИЯИ РЗ-86-779. - Дубна, 1986.
15. Лисичкин Ю.В., Новиков А.Г., Семенов В.А., Тихонова С.И. Получение обобщенного спектра частот колебаний атомов замедлителя из экспериментальных дважды дифференциальных сечений рассеяния медленных нейтронов // Вопросы атомной науки и техники. Серия "Ядерные константы." - 1981. - Вып. 3. - С. 53.
16. Ионкин В.И., Лисичкин Ю.В., Новиков А.Г. и др. Дважды дифференциальные сечения рассеяния медленных нейтронов водой в широком диапазоне температур и давлений // Вопросы атомной науки и техники. Серия "Ядерные константы." - 1989. - Вып. 1. - С. 19.



17. Искендеров С.М., Новиков А.Г. Исследование вращательной диффузии молекул воды //Ж. физ. химии. - 1982. - Т. 56. - № 10. - С. 2396.
18. Новиков А.Г., Ваньков А.А., Гостева Л.С. Анализ температурной зависимости обобщенного спектра частот воды //Ж. структ. химии. - 1990. - Т. 31. - № 1. - С. 55.
19. Новиков А.Г., Лисичкин Ю.В., Фомичев Н.К. Микродинамические характеристики протона молекулы воды в широком диапазоне температур //Ж. структ. химии. - 1990. - Т. 31. - № 4. - С. 56.
20. Лисичкин Ю.В., Искендеров С.М., Новиков А.Г., Фомичев Н.К. Взаимодействие медленных нейтронов с водой в околокритической и надкритической области. Ч.1. Дважды дифференциальные сечения рассеяния медленных нейтронов водой, находящейся в околокритическом и надкритическом состояниях: Препринт ФЭИ-1366. - Обнинск, 1983.
21. Лисичкин Ю.В., Новиков А.Г., Фомичев Н.К. Анализ трансляционной части закона рассеяния медленных нейтронов надкритической водой //Ж. физ. химии. - 1987. - Т. 61. - № 1. - С. 250.
22. Юхневич Г.В., Ветров А.А. Димерные комплексы в парах воды плотностью 0.1 г/см<sup>3</sup> // Доклады АН СССР. - 1972. - Т. 204. - № 1. - С. 154.
23. Стырикович М.А., Юхневич Г.В., Ветров А.А., Вигасин А.А. Молекулярный состав паров воды высокой плотности и некоторые их термодинамические характеристики // Доклады АН СССР. - 1973. - Т. 210. - № 2. - С. 323.
24. Френкель Я.И. Кинетическая теория жидкостей. - Л.: Наука, 1975.
25. Семенченко В.С. Избранные главы теоретической физики. - М.: Просвещение, 1966.
26. Ландсберг Г.С., Ухалин С.А. Зависимость комбинационного спектра воды от плотности и давления // Доклады АН СССР. - 1937. - Т. 16. - № 8 - С. 403.
27. Frank E., Roth K. Infra-red absorption of HOD in water at high pressures and temperatures // Disc. Far. Soc. - 1967. - № 43. - P. 108.
28. Бондаренко Г.В., Горбатый Ю.Е., Эдельштейн В.М. Влияние температуры и давления на колебательно-вращательные спектры надкритической воды // Доклады АН СССР. - 1974. - Т. 214. - № 2. - С. 365.
29. Амирханов Х.И., Керимов А.М. Экспериментальные исследования теплоемкости  $C_p$  воды и водяного пара при сверхкритических параметрах состояния // Теплоэнергетика. - 1963. - № 9. - С. 61.
30. Сирота А.М., Мальцев Б.К. Экспериментальные исследования теплоемкости воды в критической области // Теплоэнергетика. - 1962. - № 1. - С. 52.
31. Сирота А.М., Латунин В.И., Беляева Г.М. Экспериментальные исследования максимумов теплопроводности воды в критической области // Теплоэнергетика. - 1973. - № 6. - С. 6.
32. Горбатый Ю.Е., Бондаренко Г.В. Колебательно-вращательные спектры дейтероаналогов воды при давлениях до 500 бар и температурах до 550°C. Очерки физ.-хим. петрологии. - М.: Наука, 1976. - Вып. 6. - С. 46.
33. Семенченко В.С., Баскакова В.Б. О закритической области воды //Ж. физ. химии. - 1965. - Т. 39. - № 12. - С. 3105.
34. Годнев И.Н. Вычисление термодинамических функций по молекулярным данным. - М.: Изд. технико-теор. литературы. - 1956.
35. Вукалович М.П., Ривкин С.Л., Александров А.А. Таблицы теплофизических свойств воды и водяного пара. - М.: Изд. стандартов, 1969.
36. Новиков А.Г., Лисичкин Ю.В., Фомичев Н.К. Взаимодействие медленных нейтронов с водой в околокритической и надкритической области. Ч. 2. Молекулярный механизм перехода жидкость-газ: Препринт ФЭИ-1403. - Обнинск, 1983.

Поступила в редакцию 12.01.2001

The prognosis model and the algorithm of the lifetime evaluation and the residual lifetime prognosis of the Nuclear power plant constructional elements determined its strength reliability is considered. The algorithm based on the methods of the damaged environment mechanics.

#### **УДК 621.039.53**

*Application of Two Types of Non-Destructive Analysis Instruments for Spot Check of Nuclear Materials \ O.V. Krivosheina; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001.- 7 pages, 2 illustrations. – References, 6 titles.*

Methodology of spot check of nuclear materials with two types (qualitative and quantitative nuclear materials (NM) assay) of non-destructive analysis (NDA) instruments is considered in the article. Combined application of the instruments significantly decreases cost of checks, and allow to resolve the detection problem of different NM quantity theft from accounting item. New method of sampling size calculation by means of diagrams is proposed.

#### **УДК 51-72:621.039.534**

*Transient Model of Main Condenser for NPP Simulator \ A. A. Kazantsev, V.A. Levchenko; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. - 11 pages, 2 illustrations. – References, 11 titles.*

In the paper the description of a mathematical model of the two-phase non-equilibrium heat exchanger – main condenser, designed for NPP simulator is briefly considered.

#### **УДК 621.039.526**

*Comparative Safety Analysis of Fast Reactors, Cooled by Alloys of Liquid Metals \ V.S. Okunev; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001.- 8 pages, 4 illustrations, 1 table. – References, 5 titles.*

The results of the comparative safety analysis of LMFRs cooled by the liquid metals and their alloys are presented. The traditional type layouts with minimal (optimal) void reactivity effect are compared. Three groups of the coolant are considered: alkaline metals and their alloys, heavy metals and their alloys, and alloys of the alkaline with heavy metals.

The most preferable the LMFR cooled by Pb, Bi and Pb-Bi-alloy. The less preferable the layout, cooled by alkaline metals and their alloys. The LMFR, cooled by alloys of the alkaline with heavy metals, are takes the intermediate position by the self-protection level.

#### **УДК 621.039.56**

*Scattering of Slow Neutrons by Water in Critical States \ Yu.V. Lisichkin, A.G. Novikov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001.- 9 pages, 4 illustrations. – References, 36 titles.*

The analysis of experimental and calculation investigations of slow neutron double-differential scattering cross sections for water, being in the sub- and supercritical states, is presented. Experimental part of this work has been performed with the double time-of flight neutron spectrometers DIN-1M and DIN-2PI, operating on the pulsed reactors IBR-30 and IBR-2 (Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR, Dubna). It has been shown, the experimental results can be described in assumption that water in the nearly critical state is a mixture of two components: gas-like one with the properties, being similar to ideal gas of monomeric water molecules and liquid-like one with the properties not far from low temperature water. From the experimental data dependence of relative concentrations on these two components has been extracted as function of the water common molecular density. Physical interpretation of the results obtained is given on the basis of Ya. I. Frenkel theory of heterophase fluctuations and using thermodynamics of supercritical state and phase transitions elaborated by V. K. Semenchenko. The results obtained are compared with the experimental data of other authors as well.