

ИССЛЕДОВАНИЕ ПЛОТНОСТИ ЖИДКИХ СВИНЦА, ЦЕЗИЯ И ГАЛЛИЯ ГАММА-МЕТОДОМ

А. С. Басин, А. Н. Соловьев

(Новосибирск)

Для исследования плотности металлов в жидком состоянии использован бесконтактный гамма-метод, основанный на явлении ослабления веществом проникающего излучения. Метод широко используется в технике для измерений плотности твердых тел и жидкостей [1,2] при низких температурах и в последнее время начал применяться в физико-химических исследованиях расплавов при высоких температурах [3,5]. Анализ опубликованных работ показывает, что возможности гамма-метода использованы пока далеко не полностью.

Ниже описывается экспериментальная установка для исследования плотности расплавов гамма-методом, а также результаты измерений плотности трех жидких металлов.

Расчетные зависимости. В реальных условиях высокотемпературной установки на пути пучка гамма-квантов от источника до детектора, кроме слоя исследуемого вещества (с толщиной δ , плотностью ρ и массовым коэффициентом ослабления излучения μ), имеются еще и «паразитные» поглощающие среды: детали конструкции, стенки тигля и газ, заполняющий корпус печи. В таких условиях интенсивность первичного излучения на входе в детектор (при начальной интенсивности узкого пучка I) будет

$$I_g = I \exp \left(-\mu\rho\delta - \sum_i \mu_i\rho_i\delta_i \right) \quad (1)$$

Здесь члены μ_i , ρ_i , δ_i характеризуют поглощающую способность «паразитных» сред.

Так как точность табличных коэффициентов поглощения невелика, то величину $\sum_i \mu_i\rho_i\delta_i$ лучше определять в предварительных опытах в отсутствие исследуемой жидкости. По этой же причине целесообразно применять относительный вариант метода, т. е. определять по существу температурную зависимость плотности. Расчетная формула относительного варианта метода имеет вид

$$\bar{\rho} = \rho_1 \frac{1 + \alpha t_1}{1 + \alpha t} \frac{\ln I_0/I}{\ln I_{01}/I_1} \quad (2)$$

Здесь ρ и ρ_1 — плотность исследуемой жидкости при температуре t и t_1 ; α — коэффициент линейного расширения материала тигля; I_0 и I_{01} — интенсивность излучения, регистрируемая детектором при температуре t и t_1 , в отсутствие исследуемой жидкости; I и I_1 — интенсивность излучения при t и t_1 , когда жидкость помещена в тигель. Для определения I_0 и I_{01} необходимо проводить прямые опыты.

При применении дискретного метода регистрации излучения в условиях, когда интенсивность излучения прямо пропорциональна средней скорости счета n , формула (2) принимает вид

$$\rho = \rho_1 \frac{1 + \alpha t_1}{1 + \alpha t} \frac{\ln n_0/n}{\ln n_{01}/n} \quad (3)$$

где n_0 , n_{01} , n и n_1 — средние скорости счета, соответствующие интенсивностям I_0 , I_{01} , I и I_1 .

Экспериментальная установка. Схема экспериментальной установки, предназначенной для исследования плотности расплавленных металлов, в том числе и щелочных, изображена на фиг. 1.

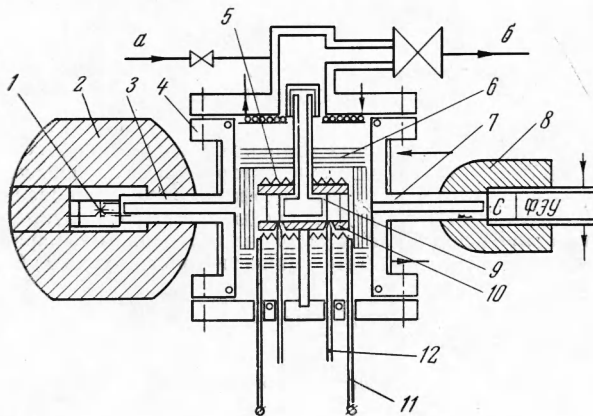
Исследуемый металл помещается в цилиндрический тигель 9 с тонкими плоскими торцевыми стенками. Тигель с металлом устанавливается в толстостенный, выравнивающий температуру, никелевый блок 10, с внутренней стороны которого заделаны четыре термопары. С наружной стороны блока намотан электрический нагреватель 5. Сборка блока с тиглем и нагревателем окружается системой тонких металлических экранов 6 и монтируется на нижней крышке цилиндрического корпуса печи 4, в котором можно создавать вакуум до 10^{-5} мм рт. ст. и давление инертного газа до 200 атм. Установка тигля точно по оси пучка излучения осуществляется юстировочными винтами.

Узкий пучок γ -квантов организуется системой двух соосных коллиматоров — у источника 3 и детектора 7 — с диаметром канала 5 мм, вваренных в корпус печи 4. Полная длина пути пучка от источника излучения до детектора составляет 550 мм.

Источник излучения 1 (использовался Co^{60} активностью ~ 1 кюри) помещен в поворотное устройство, связанное с коллиматором источника, и может находиться в двух строго фиксированных положениях: «работа» и «хранение». В первом случае он находится точно против отверстия коллиматора, во втором случае — сдвинут на угол $\sim 30^\circ$.

Измерительная часть установки включает в себя аппаратуру для измерения температуры исследуемого металла, давления в корпусе печи и аппаратуру для измерения интенсивности излучения.

Измерения температуры металла производились четырьмя термопарами (ПП или ХА) в комплекте с потенциометром Р-307 или (при выходе на режим) ЭПП-09. Давление в корпусе измерялось образцовым манометром класса 0.4, а разрежение — вакуумметром ВИТ-1А.

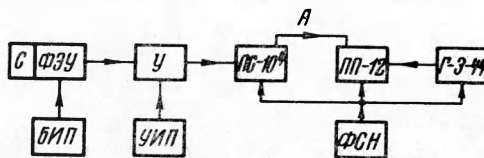


Фиг. 1

Блок-схема аппаратуры для измерения интенсивности излучения представлена на фиг. 2.

В качестве детектора излучения применялся сцинтиляционный счетчик, состоящий из монокристалла $\text{NaI}(\text{Tl})$ диаметром 40 мм и толщиной 40 мм и фотоумножителя ФЭУ-13.

С выхода ФЭУ импульсы поступают на усилитель У, в качестве которого использовался незначительно переделанный блок УСС от радиометра ПП-8. Усиленные импульсы подаются на прибор ПС-10 000, во входном пороговом устройстве которого осуществлялась дискриминация шумов ФЭУ и усилителя, а далее пересчетная схема сосчитывала полезный сигнал.



Фиг. 2

Для точного отсчета интервалов времени была применена дискретная схема электронных часов, состоявшая из прецизионного генератора Г-3-44 и счетного прибора ПП-12. Запуск и остановка обоих счетных приборов (т. е. счетчика сцинтиляционных импульсов ПС-10 000 и счетчика времени ПП-12) осуществлялись одним НР-контактом на приборе ПС-10 000.

Известно, что при дискретном методе регистрации излучения при помощи сцинтиляционного детектора основную погрешность вносит нестабильность коэффициента усиления ФЭУ, поэтому в наших экспериментах были приняты специальные меры для повышения его стабильности.

Детектор был смонтирован в кожухе с термостатирующей рубашкой. Питание ФЭУ осуществлялось от батарейного источника (БИП) емкостью ~ 5 ач, а рабочее напряжение выбиралось на наиболее пологом участке плато счетных характеристик, которые были получены экспериментально (до скоростей счета в 60 000 имп/сек). Кроме

этого, экспериментально было установлено, что наиболее стабильные результаты при длительной работе и хорошую воспроизводимость их в течение нескольких дней можно получить, применяя специальный режим питания ФЭУ, при котором рабочее напряжение на ФЭУ подается не постоянно, а с перерывами, в течение которых ФЭУ «отдыхает», причем напряжение с ФЭУ в период «отдыха» не снимается полностью, а лишь снижается до величины, при которой амплитуда цинтилляционных импульсов становится примерно равной амплитуде собственных шумов ФЭУ при рабочем напряжении.

Техника эксперимента и обработка результатов. Во всех проведенных экспериментах методика замеров интенсивности излучения была одинаковой. Одновременно с включением измерительной аппаратуры для прогрева на ФЭУ подавалось пониженное напряжение питания (напряжение «отдыха»). После прогрева электронных схем и выхода печи на заданный температурный режим на ФЭУ подавалось рабочее напряжение питания. По истечении периода установления режима ФЭУ (10—12 мин) проводилось 6—7 замеров скорости счета с экспозицией от 100 до 300 сек, причем отмечались интервалы времени между замерами, а также интервал времени от момента включения рабочего напряжения питания ФЭУ до начала первого замера, чтобы внешние условия работы ФЭУ были одинаковыми для всех измерений. По окончании замеров напряжение питания ФЭУ снижалось до напряжения «отдыха», под которым ФЭУ находился во время выхода печи на другой температурный режим.

До начала опытов с металлом в корпус устанавливалась полная сборка печи с пустым тиглем и проводились тарировочные измерения, т. е. определялся фон (величина фона во всех экспериментах составляла ~ 2% от рабочего уровня) и начальная скорость счета n_0 при комнатной температуре и различных давлениях газа в корпусе печи (от 10^{-5} мм рт. ст. до 15 атм в проведенных экспериментах). В предварительных опытах было показано, что изменение остальных «паразитных» поглощений с изменением температуры пренебрежимо мало.

По окончании тарировки тигель заполнялся металлом и начинались основные опыты, во время которых снимались зависимости скорости счета от температуры.

Таблица 1

Плотность жидкого свинца	
T, °K	ρ , г/см ³
645.7	10.64
690.1	10.54
717.4	10.52
838.4	10.38
949.8	10.20
1019	10.14
1109	10.03
1152	9.95
1246	9.85
1329	9.75

Таблица 2

Плотность жидкого цезия

T, °K	ρ , г/см ³	T, °K	ρ , г/см ³
306.7	1.836	785.7	1.562
315.3	1.829	797.9	1.552
323.9	1.826	852.7	1.526
366.1	1.802	870.9	1.519
369.7	1.800	884.0	1.508
435.6	1.762	906.2	1.497
483.2	1.736	977.2	1.460
521.1	1.715	987.5	1.447
526.4	1.712	1013.2	1.434
541.8	1.703	1043.6	1.422
587.1	1.684	1049.4	1.416
622.3	1.657	1076.5	1.394
669.3	1.631	1077.2	1.399
689.8	1.627	1115.0	1.370
752.2	1.589	1125.2	1.372

Таблица 3

Плотность жидкого галлия

T, °K	ρ , г/см ³	T, °K	ρ , г/см ³
295.6	6.1031	596.5	5.8940
296.0	6.1021	603.7	5.8884
307.1	6.0930	624.5	5.8776
314.4	6.0880	635.0	5.8700
321.4	6.0830	676.1	5.8457
340.5	6.0669	706.8	5.8245
359.1	6.0550	708.1	5.8240
380.5	6.0388	761.9	5.7930
404.4	6.0209	798.7	5.7682
421.3	6.0119	850.8	5.7396
436.6	5.9992	880.7	5.7162
458.4	5.9818	920.5	5.6998
472.0	5.9708	971.9	5.6627
482.8	5.9668	992.1	5.6627
485.4	5.9646	1018.2	5.6342
499.0	5.9562	1059.5	5.6176
509.0	5.9491	1085.1	5.6020
515.9	5.9386	1112.8	5.5871
522.7	5.9385	1171.0	5.5514
536.5	5.9310	1220.7	5.5290
552.3	5.9215	1263.9	5.5107
554.4	5.9179	1342.1	5.4704
583.4	5.8994	1407.7	5.4359
593.8	5.8950		

Все измерения проводились только в стационарных режимах, когда температура изменялась со скоростью не более 2 град/час. Измерения начинались с температуры, по возможности наиболее близкой к температуре плавления металла, а в начале каждого нового дня измерений обязательно повторялся режим в уже исследованном интервале температур.

В расчете принимались средние значения температур и средние значения замеренных скоростей счета. В замеренные скорости счета вводилась поправка на просчеты счетного прибора, учитывались: величина фона и изменение активности источника излучения.

Результаты измерений. Плотность свинца измерялась в основном для проверки работоспособности установки. Исследовался свинец марки «Ч» по ТУ 70-56 (с содержанием контролируемых примесей не более 0.035%) в тигле из нержавеющей стали длиной 38 мм. Опорное значение плотности ρ_1 было принято по уравнению из работы [6] для температуры 717 °К. Результаты измерений, представленные в табл. 1, описываются уравнением

$$\rho_f(\text{Pb}) = 10.676 - 12.887 \cdot 10^{-4} (T - 600.6) \text{ г/см}^3$$

со среднеквадратичным отклонением $\pm 0.16\%$.

Максимальная погрешность однократного измерения при 1320 °К оценивается в $\sim 0.4\%$, без учета погрешности определения ρ_1 .

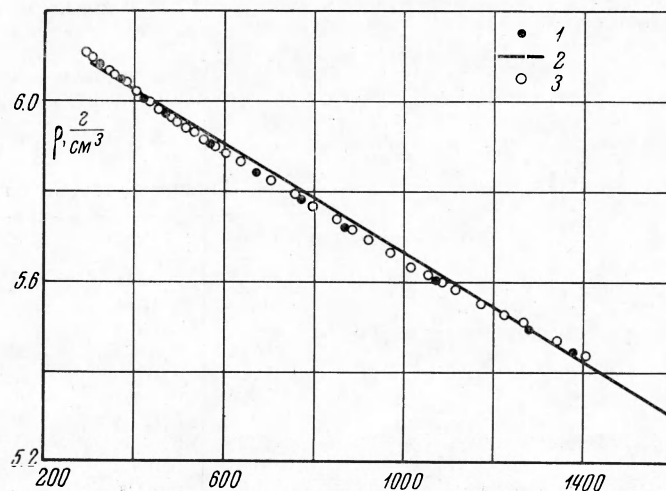
Взятый для исследования цезий содержал 99.9% основного вещества. Тигель (из нержавеющей стали длиной 100 мм) заполнялся цезием в аргонном шкафу. Из-за аварии нагревателя не удалось подняться выше 1123 °К. Результаты измерений, представленные в табл. 2, описываются уравнением

$$\rho_f(\text{Cs}) = 1.8390 - 5.665 \cdot 10^{-4} (T - 301.4) \text{ г/см}^3$$

(со среднеквадратичным отклонением 0.23%), незначительно отличающимся от уравнения, предложенного в [7], по которому была принята опорная точка для температуры 306.7 °К.

Оценка максимальной погрешности измерения при 1120 °К дает величину $\sim 0.7\%$ (без учета погрешности в определении ρ_1).

Последним в этой серии опытов исследовался галлий (в кварцевом тигле длиной 60 мм).



Фиг. 3

Результаты исследования плотности жидкого галлия (с чистотой по РЭТУ 851-61) представлены в табл. 3 и на фиг. 3, где они сравниваются с данными других авторов [8,9]. Наши данные во всем интервале температур совпадают в пределах 0.1% с данными Hoather, приведенными в [8] (по ним была принята опорная точка для температуры 307.1 °К) и могут быть интерполированы отрезками трех прямых для температур от температуры плавления до 505 °К

$$\rho_f(\text{Ga}) = 6.09538 - 7.208 \cdot 10^{-4} (T - 302.93) \text{ г/см}^3$$

для температур от 505 до 1020° К

$$\rho_f(\text{Ga}) = 5.94933 - 6.122 \cdot 10^{-4} (T - 505) \text{ г/см}^3$$

для температур от 1020 до 1400° К

$$\rho_f(\text{Ga}) = 5.63464 - 5.127 \cdot 10^{-4} (T - 1020) \text{ г/см}^3$$

Среднеквадратичное отклонение наших данных от этих зависимостей не превышает 0.05% в соответствующих интервалах температур. Максимальная погрешность измерения при 1400 °К оценивается в 0.25% (без учета погрешности в определении ρ_1).

В недавно опубликованной работе [9] плотность жидкого галлия определялась методом лежащей капли. Авторы оценили погрешность своих измерений в 0.6% и описывают данные до 1700 °К одной линейной зависимостью, которая в пределах указанной точности совпадает с нашими данными.

Коэффициент объемного расширения по нашим измерениям довольно резко изменяется вблизи температур 505 и 1020 °К. Такие изломы должны быть видны и на температурных зависимостях других свойств.

Действительно, подобный излом был обнаружен Г. И. Горягой и М. Ф. Моргуновой [10] при ~ 620 °К на кривой вязкость (η) — плотность, в координатах формулы А. И. Бачинского. Излом ясно виден при ~ 520 °К и на графике $\ln \eta \div 1/T$, построенном по данным Спеллза [8]. Такой же излом при ~ 520 °К наблюдается и на температурной зависимости поверхностного натяжения по данным [11], хотя авторы предпочли интерполировать свои данные одной квадратичной зависимостью.

Имеются также указания, что при ~ 540 °К наблюдаются аномалии на температурных зависимостях электро- и теплопроводности.

Все это свидетельствует о том, что вблизи температуры 505 °К в жидком галлии, по-видимому, происходит существенная перестройка структуры, связанная, возможно, с диссоциацией молекул Ga_2 , существующих и в жидкой фазе, на что есть указания в литературе (см. [12,13]).

Поступила 14 VI 1967

ЛИТЕРАТУРА

1. Арцыбашев В. А. Гамма-метод измерения плотности. Атомиздат, 1965
2. Таточенко Л. К. Радиоактивные изотопы в приборостроении. Атомиздат, 1960.
3. Беляев А. И. Исследование расплавленных солей с помощью радиоактивных излучений. Изв. высш. учебн. завед., Цветная металлургия, 1960, № 6.
4. Кутовой В. И., Стеценко В. И. Зависимость линейного коэффициента ослабления γ -излучения Co^{60} от температуры металла-поглотителя. Атомная энергия, 1964, т. 17, № 3.
5. Иодковский С. А., Дуб В. С., Ивахненко И. С., Боровский О. Б. Новый метод изучения плотности жидкой стали, Научно-техн. информ. о работах ЦНИИТМАШ, 1965, № 51.
6. Kirschenbaum A. D., Cahill J. A., Grosse A. V. The density of liquid lead from its melting point to normal boiling point. J. Inorg. and Nucl. Chem., 1961, vol 22, No. 1.
7. Шпильрайн Э. Э., Солдатенко Ю. А., Якимович К. А., Фомин В. А., Савченко В. А., Белова А. М., Качан Д. Н., Крайнова И. Ф. Экспериментальное исследование теплофизических и электрофизических свойств жидких щелочных металлов при высоких температурах. Теплофизика высоких температур, 1965, т. 3, № 6.
8. Spells K. E. The Determination of the viscosity of liquid gallium over an extended range of temperature. Proc. Phys. Soc., 1936, vol. 48, p. 1, No. 264.
9. Ниженко В. И., Склярченко Л. И., Еременко В. Н. Температурная зависимость свободной поверхностной энергии и плотности жидкого галлия. Укр. хим. ж., 1965, т. 31, № 6.
10. Горяга Г. И., Моргунова М. Ф. Вязкость жидких галлия и индия, Научн. докл. высшей школы, Физ.-мат. науки, 1958, т. 1.
11. Тимофеевичева О. А., Пугачевич П. П. Температурная зависимость поверхностного натяжения галлия. Докл. АН СССР, 1960, т. 134, № 4.
12. Шека И. А., Чаус И. С., Митюрёва Т. Т. Галлий. ГИТЛ УССР, 1963.
13. Rodriguez S. E., Pings C. J. X — Ray Diffraction Studies of Stable and Supercooled Liquid Gallium. J. Chem. Phys., 1965, vol. 42, No. 7.