

ИССЛЕДОВАНИЯ
В ПОДДЕРЖКУ РАЗВИТИЯ
АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ
В РЕСПУБЛИКЕ
КАЗАХСТАН

A faded, blue-tinted periodic table of elements. The actinide series is highlighted in a lighter blue color. The elements shown include Th (90), Pa (91), U (92), Np (93), and Pu (94).

Th 90 Thorium	Pa 91 Protactinium	U 92 Uranium	Np 93 Neptunium	Pu 94 Plutonium
------------------	-----------------------	-----------------	--------------------	--------------------

ИССЛЕДОВАНИЯ В ПОДДЕРЖКУ РАЗВИТИЯ
АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ
В РЕСПУБЛИКЕ КАЗАХСТАН

г. Курчатов, 2021

УДК 621.039
ББК 31.4
И88

Под общей редакцией д.ф.-м.н., профессора Батырбекова Э.Г.
и PhD Бакланова В.В.

Рецензенты: Градобоев А.В., д.т.н., профессор
Алонцева Д.Л., д.ф.-м.н., профессор

*Рекомендовано к изданию Научно-техническим советом
Национального ядерного центра РК*

А-43 Исследования в поддержку развития атомной энергетики
в Республике Казахстан, Курчатова, 2021. - 278 с : 269 ил.

ISBN 978-601-06-7963-4
2021 – 278 с : 269 ил.

В книге представлены основные результаты научных работ, которые были выполнены в филиале «Институт атомной энергии» Национального ядерного центра Республики Казахстан за период 2018-2020 гг. по научно-технической программе «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан».

Книга предназначена для научных работников, специалистов в области атомной энергетики и материаловедения, инженерно-технических работников, докторантов, аспирантов, магистрантов и студентов инженерно-физических специальностей.

УДК 577.4:577.391:503.085:539.17
ББК 31.4



ISBN 978-601-06-7963-4

© Курчатова, Филиал «Институт атомной энергии» РГП «Национальный ядерный центр РК» Министерства энергетики РК, 2021.

ВВЕДЕНИЕ

Атомная энергетика является вторым по объему производства электроэнергии в мире безуглеродным источником после гидроэнергетики, на ее долю приходится 10% мировой генерации. Мировые энергетические агентства и эксперты сходятся во мнении, что без атомной генерации сокращение выбросов парниковых газов невозможно. Именно поэтому безопасное развитие атомной энергетики является важнейшей задачей мирового масштаба, позволяющей, наряду с решением проблемы «парникового эффекта», внести весомый вклад в энергетическую безопасность и глобальный экономический рост.

Важнейшим условием безопасного и эффективного развития атомной энергетики является создание и поддержание на стабильно высоком уровне научно-технологической базы, позволяющей успешно решать возникающие задачи научного характера. Решение наиболее актуальных из таких задач осуществляется в рамках государственных научно-технических программ, реализация которых дает импульс технологическому развитию отрасли и обеспечивает рост научных компетенций.

В США в рамках принятого в 2018 году закона «Об инновационном потенциале в ядерной энергетике» осуществляется пересмотр задач исследовательских программ и разработок с целью обеспечения научного сообщества необходимой исследовательской инфраструктурой и предоставления возможности частному сектору сотрудничать с национальными лабораториями для демонстрации новых концепций реакторов. В Российской Федерации в 2018 году представлен новый проект по продвижению ядерных технологий «Атомная наука, техника и технологии», в который вошли технологии замыкания ядерного топливного цикла (ЯТЦ), реакторов малой мощности, термоядерной энергетике. В 2019 году в Китае программа научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ (НИОКР) по тематике «Исследование поведения и явлений в расплаве активной зоны при тяжелых авариях» включена в план национальных программ.

Научно-техническая поддержка развития атомной энергетике в Казахстане обеспечивается в рамках мероприятия «Развитие атомной энергетике в Республике Казахстан» подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетике» на базе РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан» (РГП НЯЦ РК), обладающего соответствующей исследовательской инфраструктурой и специалистами. Реализация программы обеспечивает поддержание высокого уровня научных знаний в атомной отрасли, развитие ее потенциала. Как отметил в своем выступлении на заседании Мажилиса Парламента Республики Казахстан в июне 2019 года Министр энергетике К.А. Бозумбаев «... Благодаря систематическим усилиям по сохранению и наращиванию ядерной компетентности в настоящее время Казахстан входит в число тех стран, которые способны самостоятельно проводить работы по фундаментальной и прикладной ядерной физике, ядерным и радиационным технологиям. Эта та ниша, где мы можем на равных сотрудничать с наиболее развитыми странами и даже имеем преимущество...».

С целью решения задач, связанных с безопасностью энергетических реакторов, проводится большой объем теоретических и экспериментальных исследований, направленных на смягчение последствий тяжелой аварии с плавлением активной зоны реактора на быстрых нейтронах, разрабатываются новые подходы к испытаниям, обеспечивающие максимальное приближение к реальным условиям.

Продолжаются исследования в области разработки альтернативного способа выведения энергии из ядерного реактора путем прямого преобразования её в световую энергию. Создается комплекс специализированных расчетных моделей, который позволит проводить анализ безопасности исследовательских реакторов. Продолжены исследования свойств конструкционных материалов чехлов отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС) реактора БН-350, прототипов кориума аварийных реакторов, а также свойств ядерного уран-графитового топлива.

В связи с развитием атомной энергетики в Казахстане перед страной неизбежно встанут вопросы безопасного обращения с отработавшим ядерным топливом (ОЯТ) и его долгосрочным хранением. Уже сейчас на территории Республики Казахстан имеется большое количество ОЯТ реактора на быстрых нейтронах БН-350. Задачей безопасного хранения этого топлива является создание таких условий, при которых продукты ОЯТ не должны попадать в окружающую среду, вызывая какие-либо экологические последствия. Предметом исследований здесь является коррозионное состояние материала чехлов ТВС, представляющих собой один из барьеров, обеспечивающих безопасность длительного хранения ОЯТ.

Дальнейшее развитие атомной энергетики нуждается в получении экспериментально обоснованных данных по таким направлениям реакторного материаловедения, как изучение свойств расплавов топливных и конструкционных материалов активных зон энергетических реакторов, исследование перспективных материалов на основе системы Ti-Al-Nb для хранения и транспортировки водорода. В связи с необходимостью решения задач конверсии на низкообогащенный уран исследовательских ядерных реакторов ИВГ.1М и ИГР, эксплуатируемых РГП НЯЦ РК, важное значение приобрели исследования физико-химических свойств ядерного уран-циркониевого и уран-графитового топлива.

В рамках 64-й сессии Генеральной конференции МАГАТЭ было подписано Совместное заявление Министерства энергетики Республики Казахстан и Национальной администрации по ядерной безопасности Департамента энергетики Соединенных Штатов Америки о минимизации применения высокообогащенного урана. Основной целью работ в этом направлении является усиление режима нераспространения ядерных материалов путем ликвидации высокообогащенного урана и перевода исследовательских реакторов на низкообогащенное урановое топливо. Проекты реализуются совместно с Национальными лабораториями США, которые отмечают высокий уровень научно-технического потенциала и компетенций организаций атомной отрасли и науки Казахстана.

В настоящей книге приведены результаты НИОКР, выполненных в РГП НЯЦ РК в течение 2018-2020 гг. по мероприятию «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» Республиканской бюджетной программы 036 «Развитие атомных и энергетических проектов».

Г Л А В А 1

ИССЛЕДОВАНИЯ ПРОЦЕССОВ, ПРОИСХОДЯЩИХ ПРИ ТЯЖЕЛОЙ АВАРИИ В АКТИВНОЙ ЗОНЕ РЕАКТОРА НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ

*Акаев А.С., Вурим А.Д., Мухамедов Н.Е., Пахниц А.В., Должиков С.А., Витюк Г.А.,
Иркимбеков Р.А., Котляр А.Н., Миллер А.А., Гайдайчук В.А., Цхе В.К.,
Сарсембаев Е.А., Светашов А.Н.*

Введение

В настоящее время большое внимание уделяется работам по созданию предельно безопасного реактора на быстрых нейтронах. Исследования, в первую очередь, направлены на обоснование конструкции перспективного реактора, характеризуемого наличием внутренне присущего свойства самозащищенности в отношении аварии с повторной критичностью. По мнению экспертов, решение задачи может быть обеспечено путем организации контролируемого удаления расплавленного топлива из активной зоны реактора с тем, чтобы исключить возможность образования в реакторе компактных бассейнов расплавленного топлива критической конфигурации. Дополнительно должна быть решена задача обеспечения удержания и охлаждения расплава внутри корпуса реактора и охлаждения аварийной активной зоны при дефиците и отсутствии расхода жидкометаллического теплоносителя.

Экспериментальные данные, которые были получены при выполнении работ в Филиале «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК (Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК) на внереакторных и реакторных стендах, подтвердили принципиальную возможность вывода расплавленного топлива из активной зоны реактора по, так называемой, внутренней трубе с натриевым теплоносителем, устанавливаемой в ТВС реактора. При этом расплав перемещался в натриевый бассейн нижнего или верхнего плenumа реактора, где происходила его фрагментация, и, таким образом, исключалась возможность формирования компактных масс расплава критической конфигурации в активной зоне реактора. По результатам проведенных экспериментов были определены время проплавления внутренней трубы при различной ее толщине, скорость перемещения расплава по этой трубе, подтверждена возможность перемещения расплава как в нижний, так и в верхний плenumы реактора на быстрых нейтронах. Были проведены эксперименты по исследованию процессов, сопровождающих перемещение расплава топлива по направляющей трубе стержня регулирования.

Экспериментальные исследования проводились одновременно на внереакторной установке EAGLE и на реакторе ИГР.

В рамках программы исследований проблем безопасности энергетических реакторов на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем на установке EAGLE в период

с 2000 по 2020 год было проведено 58 внереакторных экспериментов. В то же время на реакторе ИГР было проведено 10 полномасштабных экспериментов.

1.1 Внереакторные эксперименты

Экспериментальная установка EAGLE в ее исходной конфигурации показана на рисунке 1.1. Основное назначение установки EAGLE – изучение возможности перемещения расплава в нижний и верхний пленум реактора по сливной трубе, заполненной жидким натрием.

Электроплавильная печь (ЭПП) установки EAGLE позволяет получить до 15 кг расплава окиси алюминия, имитирующего расплав кориума реактора на быстрых нейтронах. При проведении экспериментов жидкий натрий находился в сливной трубе и/или в нижней ловушке.

В процессе эксперимента полученный в ЭПП расплав сливался в верхнюю ловушку расплава, имитирующую внутреннюю полость ТВС активной зоны реактора, проплавлял тонкостенный участок сливной трубы (с толщиной стальной стенки 1-3 мм и толщиной алюминиевой стенки 3-5 мм) и по толстостенному участку сливной трубы перемещался в нижнюю ловушку расплава, моделирующую нижний пленум реактора.

В дальнейшем установка EAGLE модифицировалась в соответствии с новыми задачами.

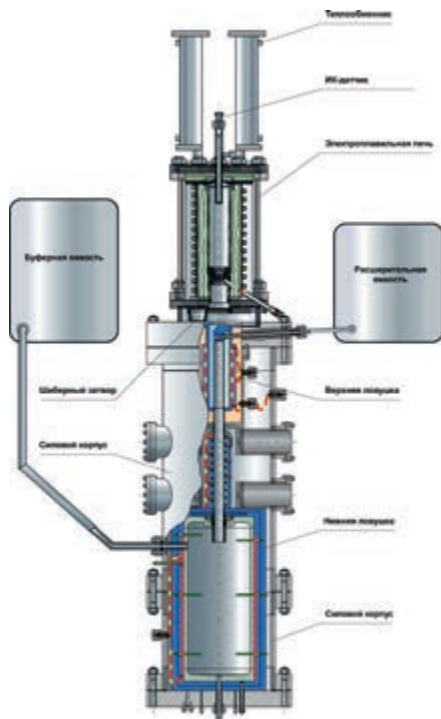


Рисунок 1.1. Экспериментальная установка EAGLE и ее конструктивная схема

Эксперименты серии FCO

Целью экспериментов серии FCO было исследование процессов охлаждения имитатора расплава активной зоны реактора на быстрых нейтронах в ограниченном количестве жидкого натрия, сопровождающегося многократным испарением и повторным заливом расплава натрием.

В соответствии со схемой проведения эксперимента (рисунок 1.2) расплав сливался в емкость, погруженную в жидкий натрий, с которым емкость была связана через отверстия в крышке.

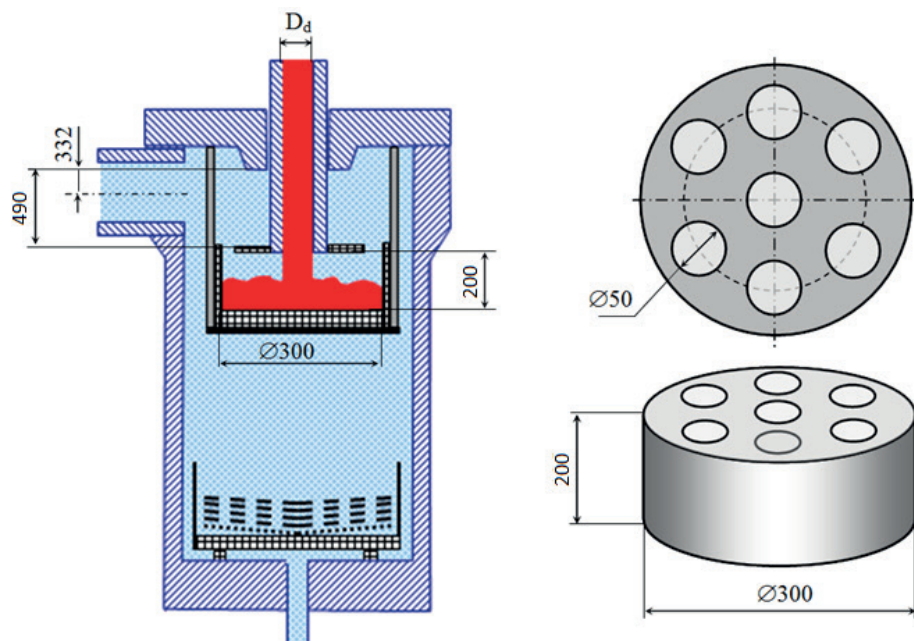


Рисунок 1.2. Схема проведения эксперимента FCO

Емкость приема расплава с внутренним диаметром 300 мм и высотой 200 мм устанавливалась внутри нижней ловушки расплава установки EAGLE. Объем емкости был выбран из такого расчета, чтобы при поступлении в нее расплава, натрий, находящийся в емкости, либо частично, либо полностью испарился с результирующим осушением поверхности расплава. После снижения давления в емкости, которое некоторое время препятствовало поступлению в нее жидкого натрия, происходил повторный залив расплава натрием через отверстия в крышке.

Днище и боковые стенки емкости выполнены из нержавеющей стали толщиной 10 мм и 5 мм соответственно. В крышке емкости выполнено 6 отверстий диаметром 50 мм для выхода паров натрия и одно отверстие в центре крышки для прохода сливной трубы. Емкость крепится к нижней ловушке расплава при помощи четырех кронштейнов.

нов, шарнирно соединенных со штангами, которые, в свою очередь, ввинчиваются в крышку нижней ловушки расплава (рисунок 1.3).

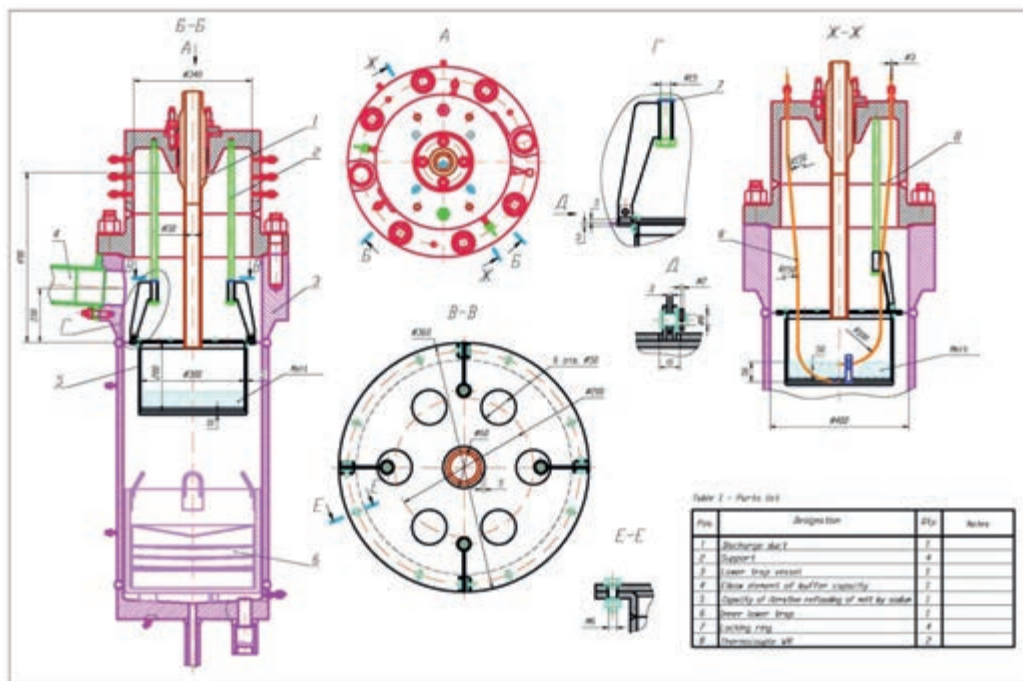


Рисунок 1.3. Эскизный проект экспериментальной секции для исследования процессов охлаждения кориума с повторным заливом расплава натрием

Эксперименты FCO-2 и FCO-2/1

Условия проведения эксперимента FCO-2 (FCO-2/1):

Температура расплава в тигле ЭПП	до 2200 °С;
Давление в полости ЭПП	до 0,69 МПа;
Давление натрия в нижней ловушке расплава	0,35 МПа;
Температура натрия в нижней ловушке расплава	400 °С;
Общее количество натрия в установке	~ 170 кг;
Интегральная тепловая энергия, подводимая к ЭПП	150÷200 МДж.

Расплав поступал в емкость из верхней ловушки по трубе с внутренним диаметром 40 мм и с толщиной стальной стенки проплавляемого участка, равной 1 мм. В верхнюю ловушку расплав окиси алюминия сливался из плавильной печи.

Схема расположения средств измерения параметров в верхней ловушке расплава и сливной трубе приведена на рисунке 1.4.

Схема расположения средств измерения параметров в нижней ловушке расплава приведена на рисунке 1.5.

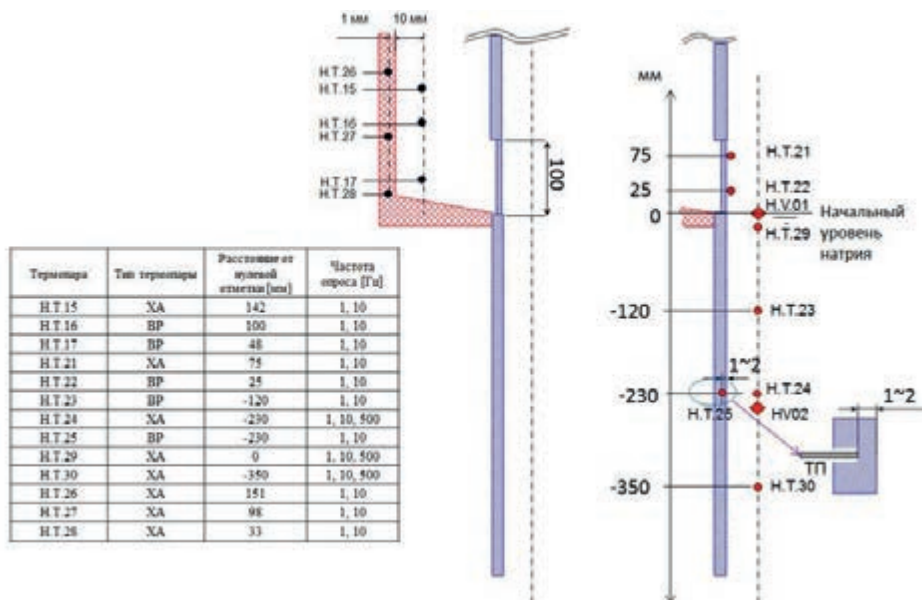


Рисунок 1.4. Схема расположения средств измерения параметров в верхней ловушке расплава и в сливной трубе

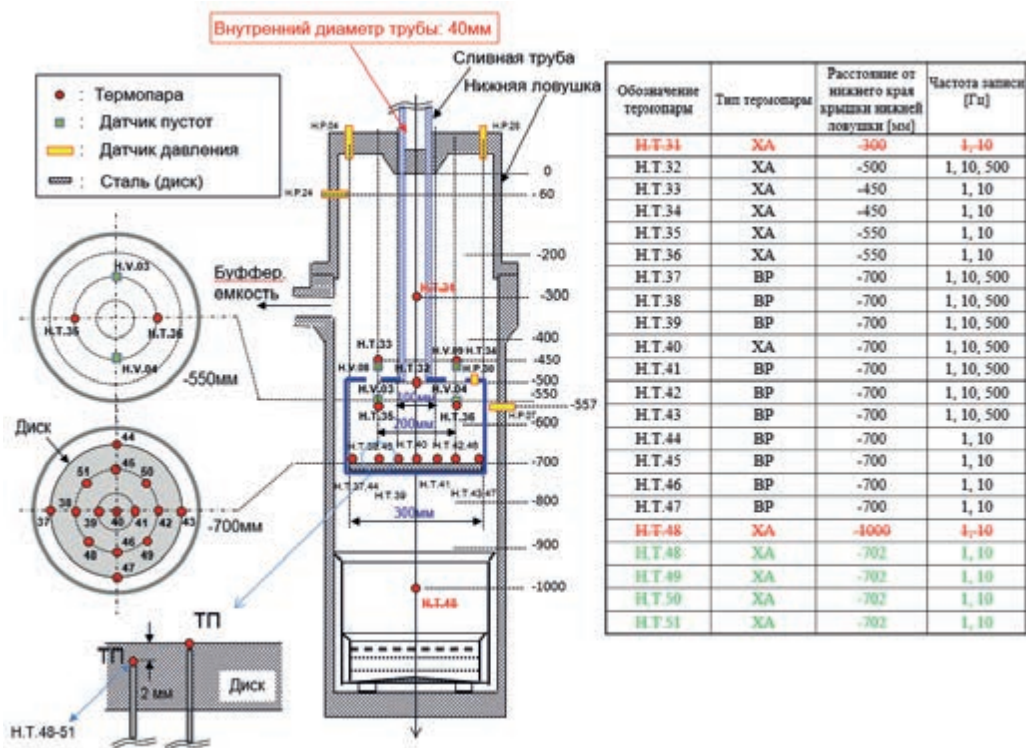


Рисунок 1.5. Схема расположения средств измерения параметров в нижней ловушке расплава

На рисунке 1.6 показан внешний вид емкости приема расплава, оснащенной термопарами и подготовленной к проведению эксперимента FCO-2.

В ходе проведения эксперимента FCO-2, на этапе нагрева шихты в тигле ЭПП до температуры 600 °С, был зарегистрирован отказ 18 термопар из 20, установленных на емкости приема расплава, в связи с чем было принято решение прекратить эксперимент.

Последующая разборка установки позволила определить причину выхода из строя термопар – отказ был вызван попаданием жидкого натрия на удлинительные провода термопар (рисунок 1.7).



Рисунок 1.6. Емкость приема расплава, подготовленная к проведению эксперимента



Рисунок 1.7. Состояние удлинительных проводов термопар в разъеме ШР-2

На рисунке 1.8 показано изменение температуры шихты во время эксперимента FCO-2. Как видно из графика, температура тигля в ходе эксперимента не превышала 710 °С, что свидетельствует о сохранении целостности окиси алюминия (шихты).

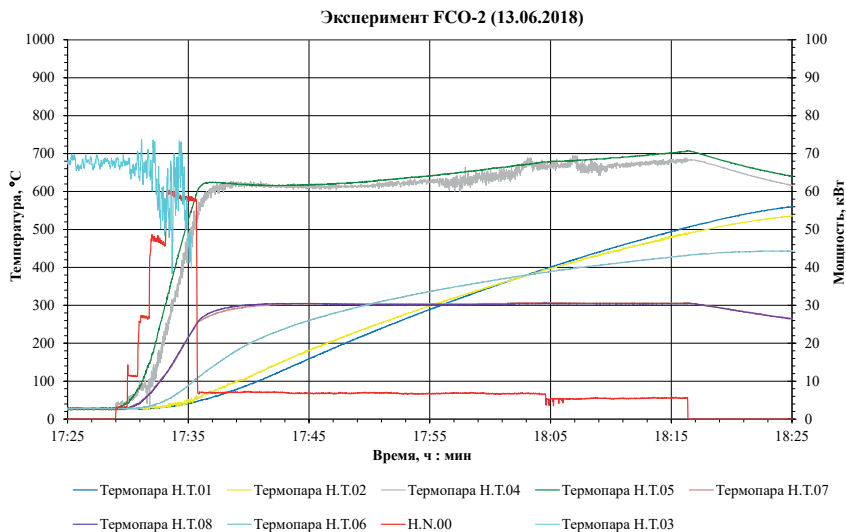


Рисунок 1.8. Изменение температуры тигля во время эксперимента FCO-2

Так как эксперимент был прерван на начальной стадии, то с учетом состояния шихты было принято решение использовать ту же шихту для проведения повторного эксперимента FCO-2/1. На рисунке 1.9 показано состояние полукольца из Al_2O_3 , используемого в качестве шихты.



Рисунок 1.9. Состояние шихты из Al_2O_3

В конструкцию термопар емкости приема расплава были внесены изменения, исключающие возможность попадания жидкого натрия в полость силового корпуса. После изготовления и установки новых термопар был проведен повторный эксперимент FCO-2/1.

На рисунке 1.10 показано изменение электрических параметров в ЭПП на эксперименте FCO-2/1.

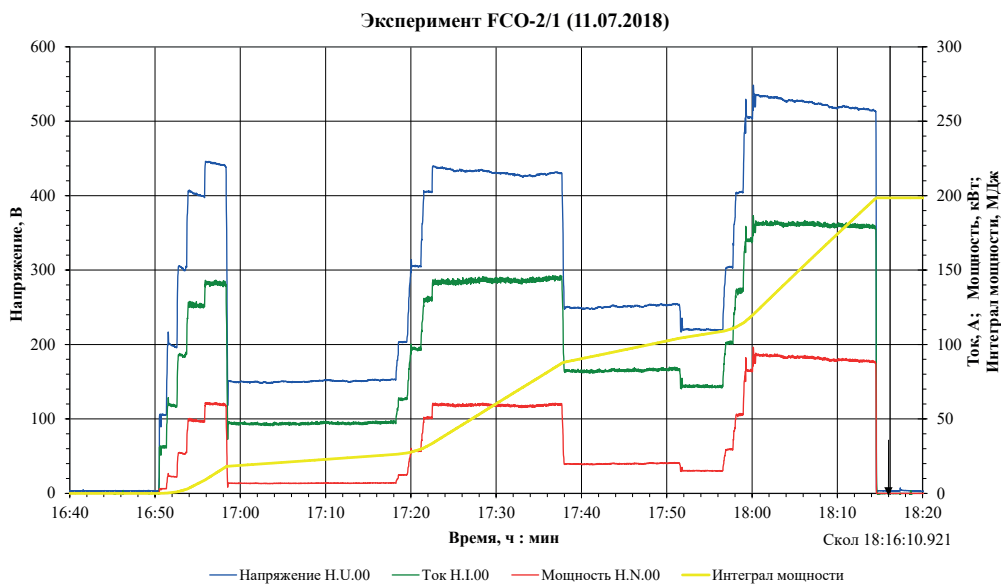


Рисунок 1.10. Изменение электрических параметров ЭПП во время эксперимента FCO-2/1

Графики, приведенные на рисунке 1.10, показывают, что электрические параметры ЭПП во время эксперимента были стабильными и находились в заданных пределах. Эксперимент был прекращен при достижении значения подведенной к ЭПП энергии, равного 198,5 МДж.

На рисунке 1.11 показано изменение температуры шихты во время эксперимента. Как видно из графика, температура расплава в тигле (перед сливом в верхнюю ловушку) была равна ~ 2188 °С, что свидетельствует о полном расплавлении окиси алюминия.

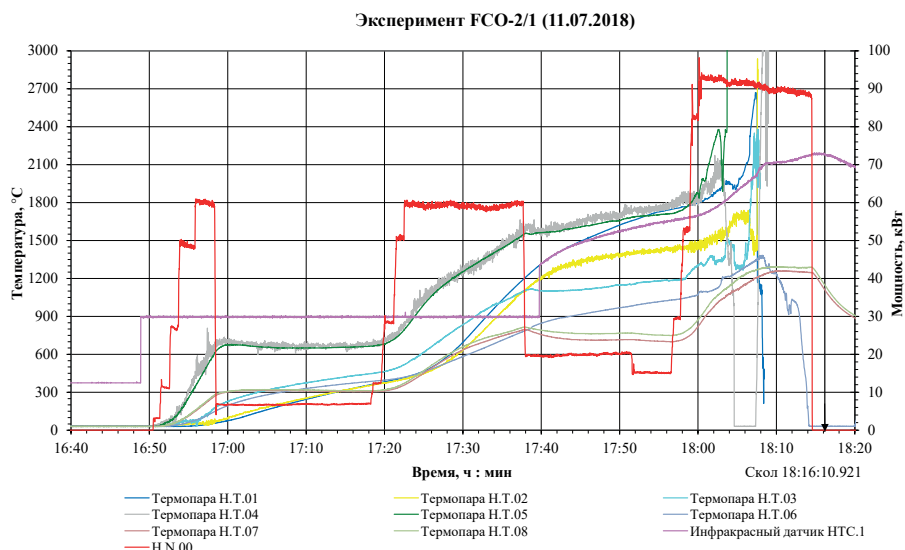


Рисунок 1.11. Изменение температуры тигля во время эксперимента FCO-2/1

На основании данных о срабатывании агрегатов стеновой автоматики слив расплава произошел в 18:16:10,921. Согласно показаниям датчика температуры, установленного на дно емкости приема расплава (к.т. Н.Т.38), максимальное значение температуры составило ~ 955 °С.

Вид емкости приема расплава после эксперимента показан на рисунках 1.12 и 1.13.

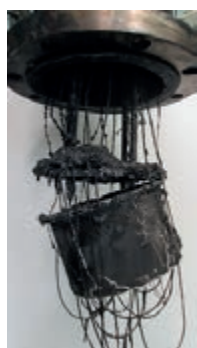


Рисунок 1.12. Емкость приема расплава после извлечения из нижней ловушки



Рисунок 1.13. Емкость приема расплава после отмывки от натрия

Выводы

В ходе эксперимента FCO-2/1 окись алюминия в плавильном тигле была расплавлена в полном объеме.

Среднее значение мощности ЭПП на максимальном уровне было равно 90 кВт. Интегральное количество энергии, подведенное к ЭПП, составило 198 МДж. Температура расплава в тигле ЭПП перед сливом расплава по показанию ИК-датчика была равна ~2187 °С.

Разрушение проплавляемого участка сливной трубы толщиной 1 мм в верхней ловушке произошло через 2,82 секунды, после скола пробки тигля ЭПП. Время прохождения расплавом нижнего участка сливной трубы составило 0,06 с. Крышка емкости приема расплава была деформирована, штанги крепления емкости повреждены не имели.

Количество расплава, слившегося из ЭПП в верхнюю ловушку, составило ~14,6 кг. Количество расплава окиси алюминия, извлеченного из емкости приема расплава, равно 5,6 кг, количество расплава в корзине нижней ловушки расплава 7,656 кг.

Эксперимент FCO-3

При подготовке эксперимента FCO-3 установка EAGLE была в соответствии с требованиями, которые предъявлялись к установке при подготовке эксперимента FCO-2/1, за исключением того, что по результатам эксперимента FCO-2/1 была увеличена толщина крышки и увеличен диаметр штанг крепления емкости приема расплава.

На рисунке 1.14 показано вновь изготовленная емкость приема расплава. Средства измерения параметров в верхней ловушке расплава, сливной трубе и нижней ловушке расплава размещались по той же схеме, что и в эксперименте FCO-2/1.



Рисунок 1.14. Внешний вид вновь изготовленной емкости приема расплава

В плавильный тигель было загружено 15 кг оксида алюминия (Al_2O_3), представляющего собой цельные кольца с наружным диаметром 120 мм, внутренним диаметром 56 мм и высотой 40 мм. Эксперимент был проведен с заполнением нижней ловушки расплава натрием. На рисунке 1.15 (см. стр.14) показано изменение электрических параметров в ЭПП.

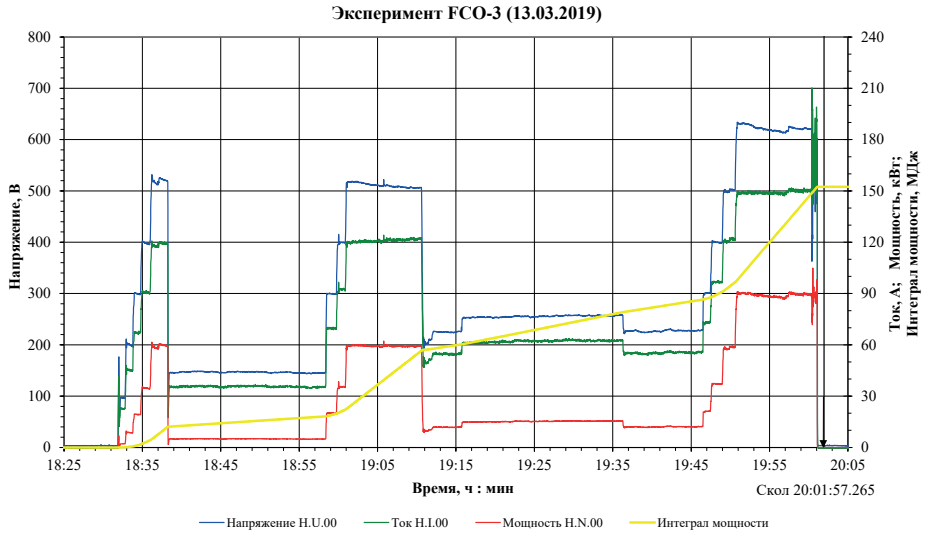


Рисунок 1.15. Изменение электрических параметров ЭПП во время эксперимента FCO-3

Графики, приведенные на рисунке 1.15, показывают, что электрические параметры ЭПП во время эксперимента оставались стабильными и находились в заданных пределах. Эксперимент был прекращен при достижении значения, подведенной к ЭПП энергии, равного 152,4 МДж.

На рисунке 1.16 показано изменение температуры шихты во время эксперимента. Как видно из графика, температура расплава в тигле перед сливом в верхнюю ловушку была равна ~ 2152 °С, что свидетельствует о полном расплавлении окиси алюминия.

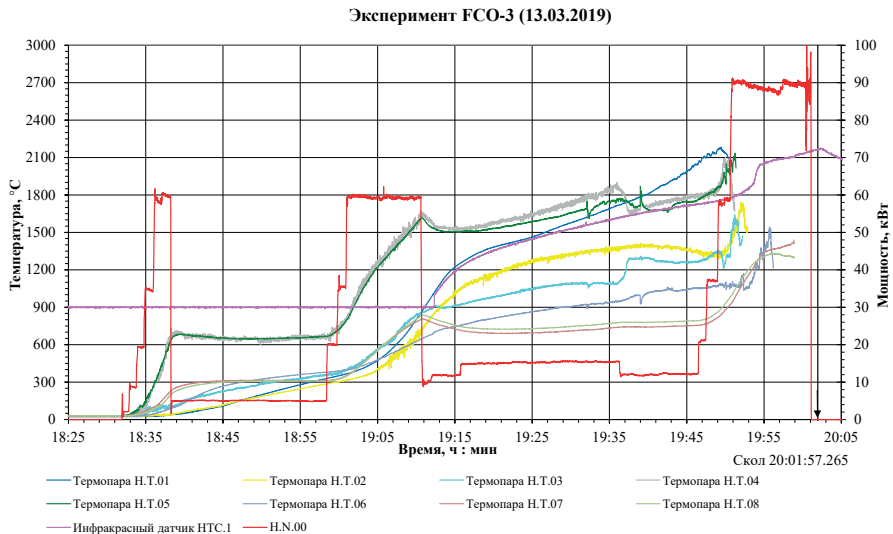


Рисунок 1.16. Изменение температуры шихты во время эксперимента FCO-3

На основании данных о срабатывании агрегатов стендовой автоматики слив расплава произошел в 20:01:57,265. Максимальное значение температуры дна емкости приема расплава, зафиксированное в к.т. Н.Т.50, составило 900 °С.

Внешний вид емкости приема расплава после эксперимента показан на рисунках 1.17-1.18.



Рисунок 1.17. Внешний вид емкости приема расплава после эксперимента



Рисунок 1.18. Внешний вид емкости приема расплава после удаления имитатора кориума с крышки

Выводы

В ходе эксперимента FCO-3 окись алюминия в плавильном тигле была расплавлена в полном объеме.

Среднее значение мощности ЭПП на максимальном уровне было равно 89 кВт. В процессе эксперимента интегральное количество энергии, подведенное к ЭПП, составило 152,4 МДж. Температура имитатора кориума в тигле ЭПП перед сливом по показанию ИК-датчика была равна ~2152 °С. Предположительно, сливная труба была заполнена натрием полностью. Количество имитатора кориума, слившегося из ЭПП в верхнюю ловушку расплава, составило ~ 8,752 кг.

Проплавление стального участка сливной трубы толщиной 1 мм в верхней ловушке произошло через 1,752 секунды после скола пробки тигля ЭПП. Время прохождения имитатором кориума нижнего участка сливной трубы составило 0,076 с. В емкости приема расплава обнаружено 4,832 кг имитатора кориума.

Крышка и штанги емкости приема расплава видимой деформации и повреждений не имеют.

Получены экспериментальные данные параметров охлаждения кориума в процессе осушения и повторного залива натрием.

Эксперименты серии FDCO

В экспериментах серии FDCO изучался процесс движения расплава кориума по направляющей трубе стержня регулирования, которая рассматривается в качестве возможного пути выведения расплавленного топлива из активной зоны быстрого реактора.

При этом важной задачей, требующей решения, является определение влияния на течение расплава демпфера (ограничителя перемещения стержня регулирования), установленного внутри направляющей трубы и выполняющего одновременно роль устройства задания расхода натрия. Поскольку речь идет о перспективных реакторах на быстрых нейтронах, то результаты исследований этих процессов являются важными для выбора конструкции демпфера.

Один из вариантов конструкции демпфера показан на рисунке 1.19.

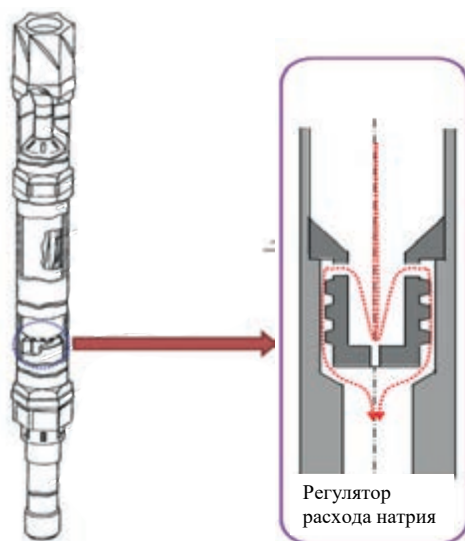


Рисунок 1.19. Общий вид конструкции регулирующей сборки реактора и регулятора расхода натрия

Для проведения исследований было разработано экспериментальное устройство, на котором в период с 2015 по 2017 годы было проведено 6 экспериментов, направленных на оптимизацию конструкции демпфера.

На первом этапе было проведено 3 эксперимента без заполнения установки натрием. Первый этап показал, что расплавленное топливо активной зоны реактора, двигаясь по направляющей трубе регулирующего стержня, снабженной регулятором расхода натрия, при определенных условиях может разрушить устройство задания расхода натрия и переместиться в нижний пленум реактора.

На втором этапе было проведено 3 эксперимента с заполнением установки натрием. В ходе проведения экспериментов варьировались размеры устройства задания расхода натрия.

В 2017 году был подготовлен и проведен заключительный эксперимент по оптимизации конструкции расходозадающего устройства. Для проведения эксперимента был изготовлен и установлен внутри сливной трубы имитатор демпфера с функцией устройства задания расхода натрия, общий вид которого приведен на рисунке 1.20.



а) верхняя часть устройства задания расхода натрия (вид сверху)



б) верхняя часть устройства задания расхода натрия (вид снизу)



в) устройство задания расхода натрия после сварки

Рисунок 1.20. Общий вид устройства задания расхода натрия

В эксперименте боковая стенка демпфера, погруженного в натрий, полностью расплавилась, как это видно из рисунка 1.21, и в результате имитатор кориума беспрепятственно был слит в нижнюю ловушку установки EAGLE.



Рисунок 1.21. Сливная труба после разрезки (стрелками показаны кольцо верхней торцевой части и дно расходозадающего устройства)

На основании результатов экспериментов, выполненных на установке EAGLE в период с 2015 по 2017 год, был сделан вывод, что разработанная конструкция демпфера с устройством задания расхода натрия, не является препятствием для движения расплава по направляющей трубе. Однако дальнейшие исследования показали, что

этот вывод является слишком оптимистичным, и разработки и экспериментальные проверки конструкции демпфера были продолжены как во внеакторных, так и внутриакторных экспериментах.

В итоге, по результатам выполненных экспериментов была изменена конструкция демпфера. Вновь разработанное демпферное устройство показано на рисунке 1.22.

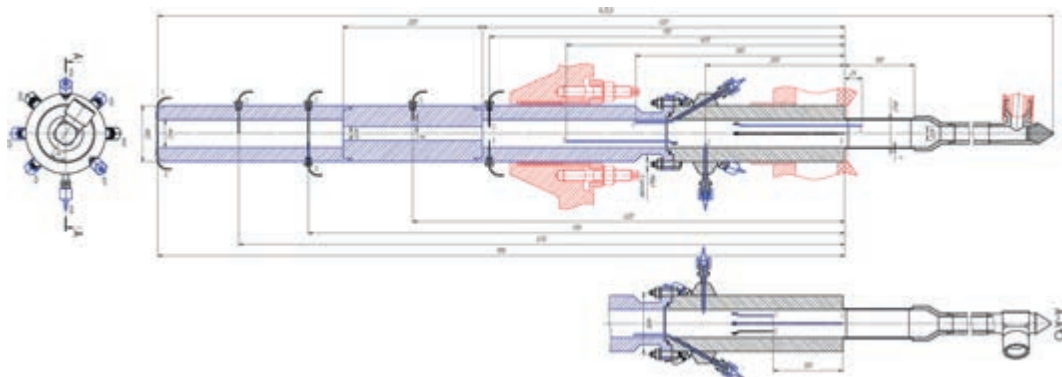


Рисунок 1.22. Конструктивная схема сливной трубы с демпферным устройством

Сливная труба (рисунок 1.22) состояла из верхнего участка, в котором выполнен канал диаметром 20 мм для прохода натрия в расширительную емкость. В верхней части к сливной трубе монтировалась расширительная труба. В средней части сливной трубы устанавливался быстро расплавляемый стальной участок высотой 100 мм с внутренним диаметром 40 мм и толщиной стенки 1 мм. На нижнем участке сливной трубы размещался ряд штуцеров для установки термпар и датчиков пустот. Внутри, на расстоянии 520 мм от дна верхней ловушки, было размещено демпферное устройство. В нижней части сливной трубы, в которой установлено демпферное устройство, внутренний диаметр сливной трубы равен 40 мм, толщина стенки сливной трубы составляла 20 мм. Имитатор демпферного устройства представлял собой цилиндр с внутренним диаметром 20 мм и длиной 200 мм, выполненный из нержавеющей стали.

Эксперимент FDCO-7

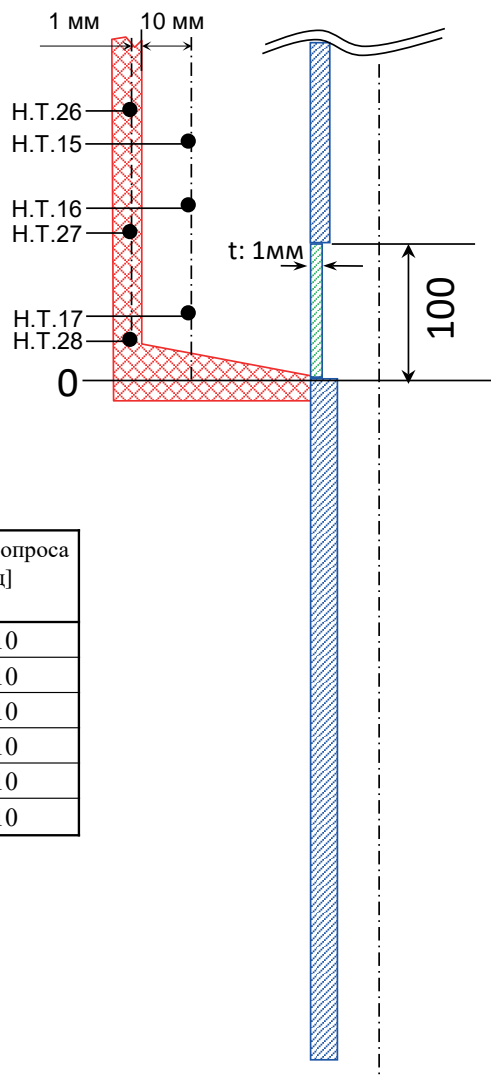
Условия проведения эксперимента FDCO-7:

Количество спеченной окиси алюминия в тигле	15,0 кг;
Температура расплава в плавильном тигле печи	до 2200 °С;
Давление в полости ЭПП	0,3 МПа;
Давление натрия в нижней ловушке расплава	0,3 Мпа;
Температура натрия в нижней ловушке расплава	~ 350 °С;
Высота заполнения сливной трубы натрием	от 0 до 100 мм;
Интегральная тепловая энергия, подводимая к ЭПП	150–200 МДж.

Для проведения эксперимента верхняя ловушка расплава, в которую расплав окиси алюминия сливается из плавильной печи, соединялась с нижней ловушкой расплава трубой с внутренним диаметром 40 мм и толщиной стальной стенки проплавляемого участка, равной 1 мм. Высота проплавляемого участка сливной трубы равна 100 мм.

Схема расположения средств измерения параметров в верхней ловушке расплава и сливной трубе приведена на рисунке 1.23.

Расположение термопар в верхней ловушке



Термопара	Тип термопары	Расстояние от нулевой отметки [мм]	Частота опроса [Гц]
Н.Т.15	СА	142	1, 10
Н.Т.16	WR	100	1, 10
Н.Т.17	WR	48	1, 10
Н.Т.26	СА	151	1, 10
Н.Т.27	СА	98	1, 10
Н.Т.28	СА	33	1, 10

Рисунок 1.23. Схема размещения средств измерения рабочих параметров в верхней ловушке расплава и на сливной трубе

Схема расположения средств измерения параметров в нижней ловушке расплава приведена на рисунке 1.24.

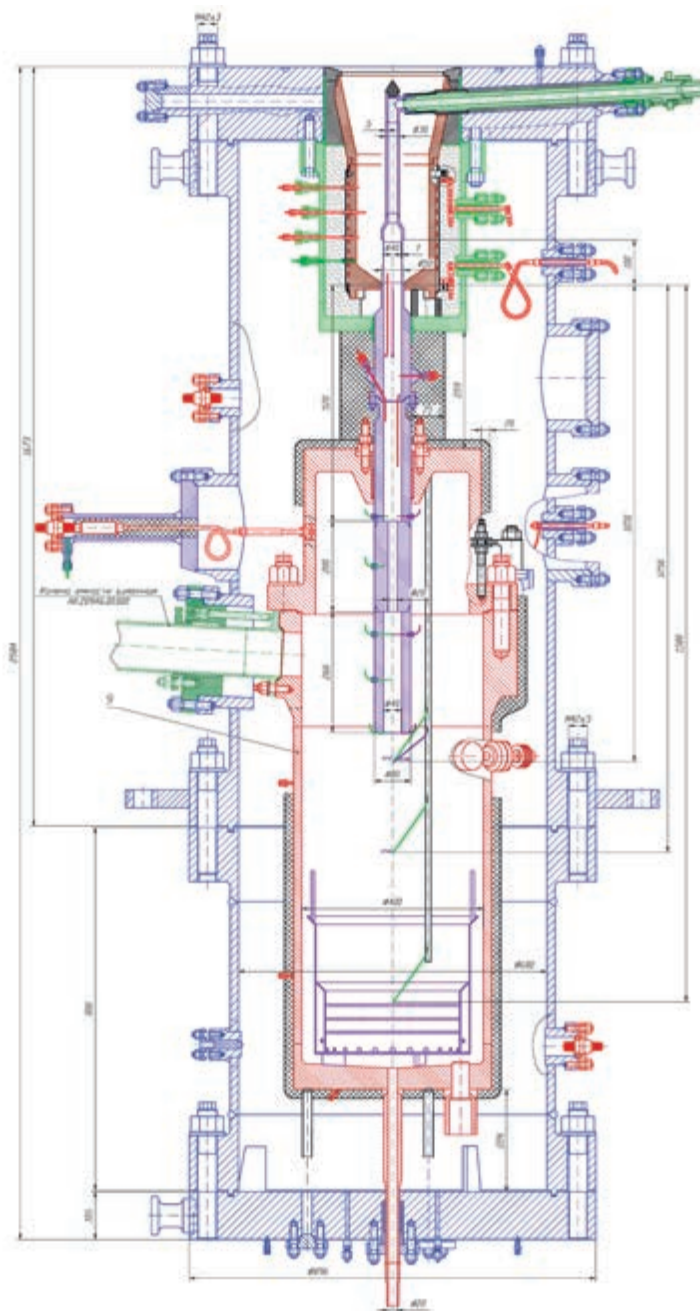


Рисунок 1.24. Схема размещения средств измерения рабочих параметров в нижней ловушке расплава

На рисунке 1.25 показано изменение электрических параметров в ЭПП во время эксперимента FDCO-7.

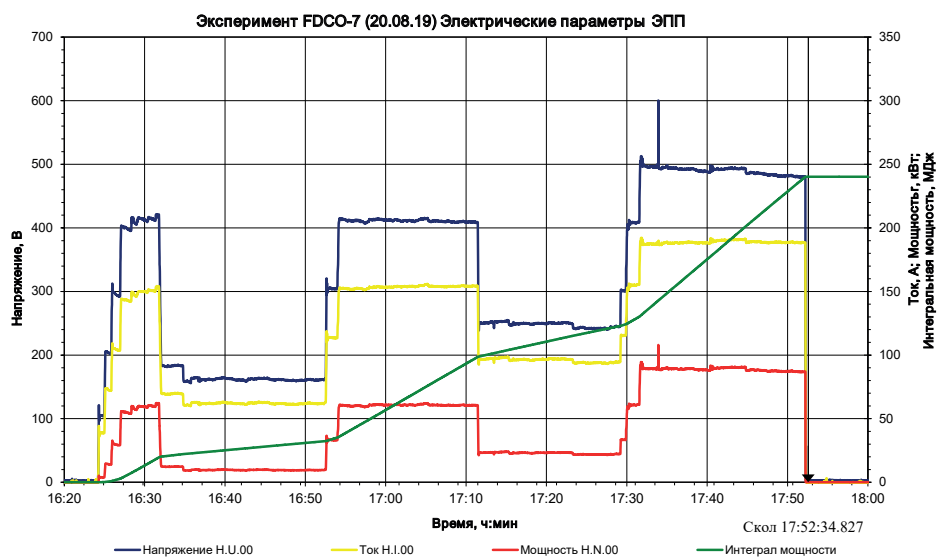


Рисунок 1.25. Изменение электрических параметров ЭПП во время эксперимента FDCO-7

Графики, приведенные на рисунке 1.25, показывают, что электрические параметры ЭПП во время эксперимента были стабильны и находились в заданных пределах. Эксперимент был прекращен при достижении значения подведенной к ЭПП энергии, равного 240,2 МДж.

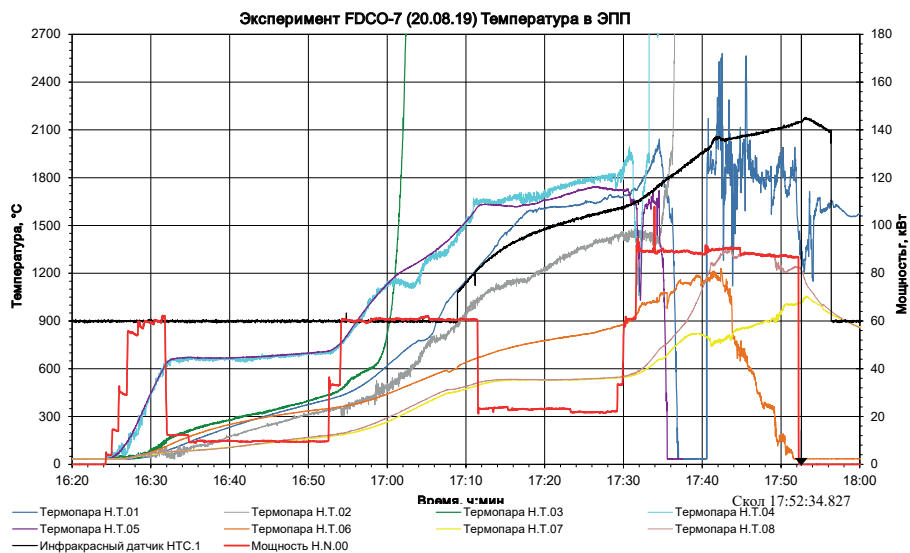


Рисунок 1.26. Изменение температуры тигля во время эксперимента FDCO-7

На рисунке 1.26 (см. стр. 21) показано изменение температуры шихты во время эксперимента. Как видно из графика, температура расплава в тигле, перед сливом в верхнюю ловушку, была равна $\sim 2174\text{ }^{\circ}\text{C}$, что свидетельствует о полном расплавлении окиси алюминия.

На основании данных о срабатывании агрегатов стандовой автоматики слив расплава произошел в 17:52:34,827. Согласно показаниям датчиков температуры, установленных на входе в емкость приема расплава (к.т. Н.Т.32 и Н.Т.33), максимальное значение температуры составило $\sim 1000\text{ }^{\circ}\text{C}$.

На рисунках 1.27 и 1.28 показан слиток расплава в верхней ловушке.

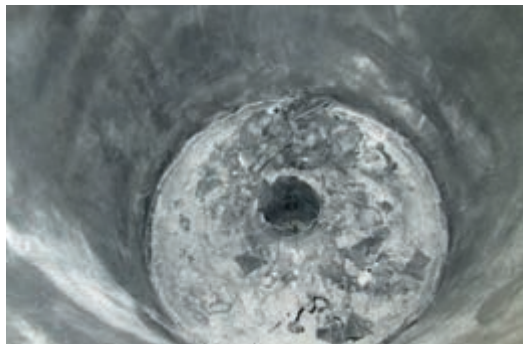


Рисунок 1.27. Слиток расплава в верхней ловушке (вид сверху)



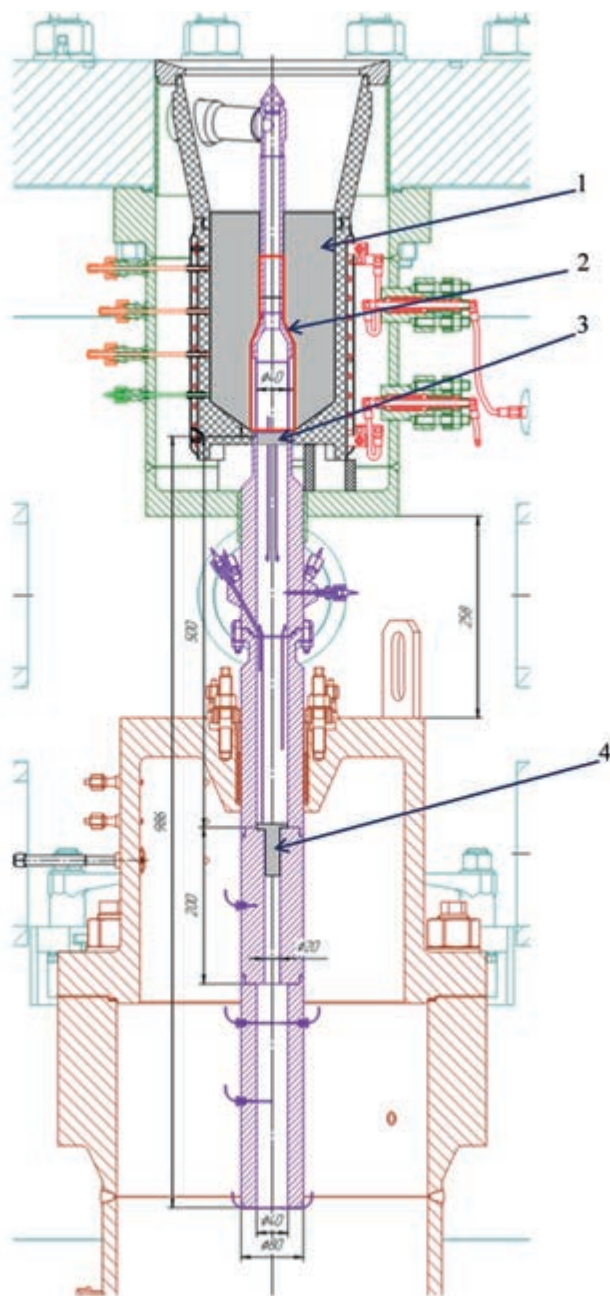
Рисунок 1.28. Слиток расплава в верхней ловушке (вид снизу)

На рисунке 1.29 показаны фрагменты затвердевшего расплава, извлеченные из корзины нижней ловушки.



Рисунок 1.29. Расплав, извлеченный из корзины нижней ловушки

На рисунке 1.30 показано предполагаемое распределение расплава в сливной трубе и верхней ловушке.



1 – расплав в тигле верхней ловушки; 2 – выгоревший участок сливной трубы; 3 – расплав на уровне дна верхней ловушки; 4 – расплав на входе в демпфер (длиной ~ 70 мм)

Рисунок 1.30. Схема распределения расплава в сливной трубе

Выводы

В ходе эксперимента FDCO-7 окись алюминия в плавильном тигле была расплавлена в полном объеме.

Среднее значение мощности ЭПП на максимальном уровне было равно 88,8 кВт. В процессе эксперимента интегральное количество энергии, подведенной к ЭПП, составило 240,2 МДж. Температура расплава в тигле ЭПП перед сливом расплава по показанию ИК-датчика была равна ~2150 °С. Предположительно, сливная труба была заполнена натрием до отметки ~ 0 мм. Количество расплава, слившегося из ЭПП в верхнюю ловушку расплава, составило ~14,436 кг.

Прохождение расплава через демпферное устройство не зафиксировано.

Количество смеси расплава окиси алюминия и расплава стали, обнаруженного в корзине нижней ловушки расплава, составило 0,089 кг.

Эксперимент FDCO-8

По результатам эксперимента FDCO-7 был внесен ряд изменений в конструкцию установки и в программу проведения эксперимента: длина сливной трубы была увеличена на ~ 470 мм; проплавляемый участок длиной 100 мм с толщиной стенки 3 мм выполнен из алюминия и начальный уровень натрия в установке требовалось установить между отметками «-150 мм» ÷ «-200 мм».

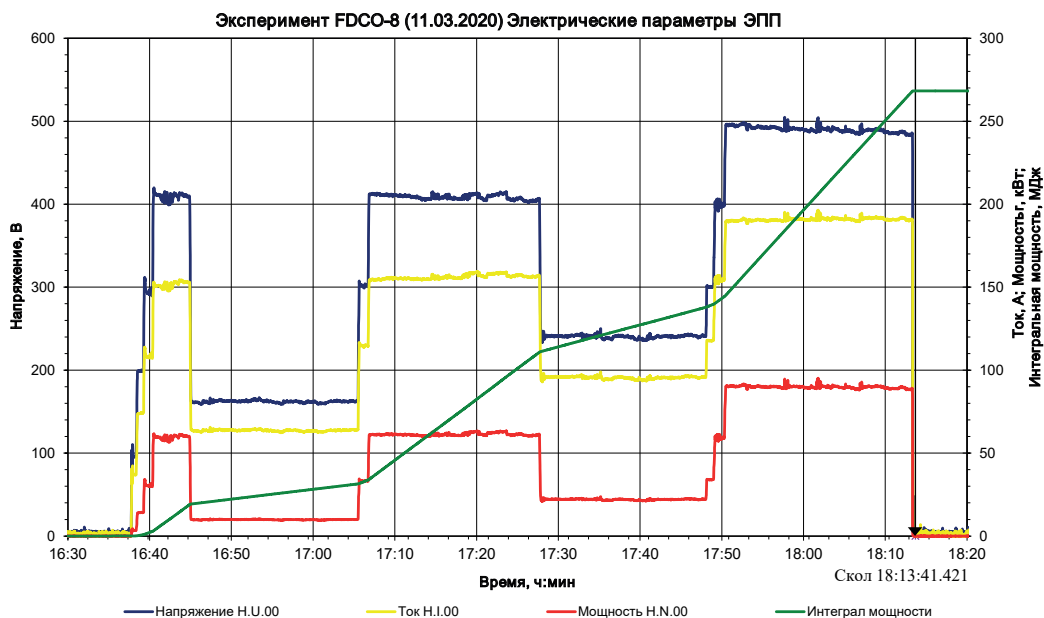


Рисунок 1.31. Изменение электрических параметров ЭПП во время эксперимента FDCO-8

На рисунке 1.31 показано изменение электрических параметров в ЭПП на эксперименте FDCO-8.

Графики, приведенные на рисунке 1.31, показывают, что электрические параметры ЭПП во время эксперимента были стабильны и находились в заданных пределах. Эксперимент был прекращен при достижении значения, подведенной к ЭПП энергии, 268,2 МДж.

На рисунке 1.32 показано изменение температуры шихты во время эксперимента. Как видно из графика, температура расплава в тигле, перед сливом в верхнюю ловушку, была равна ~ 2147 °С, что свидетельствует о полном расплавлении окиси алюминия.

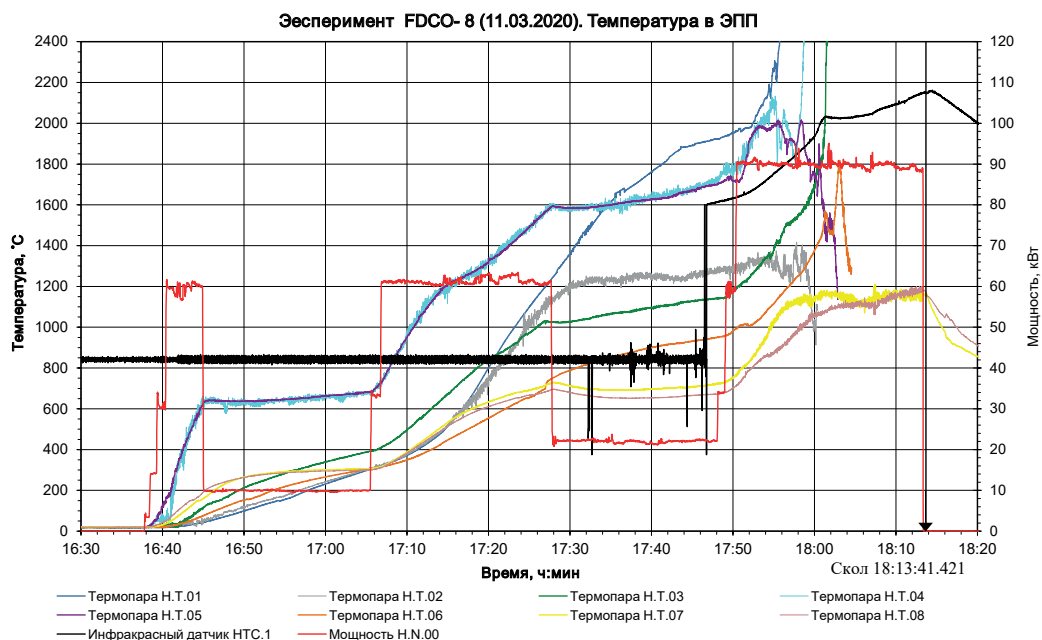


Рисунок 1.32. Изменение температуры тигля во время эксперимента FDCO-8

На основании данных о срабатывании агрегатов стендовой автоматики слив расплава произошел в 18:13:41,421. Согласно показаниям датчика температуры, установленного на входе в емкость приема расплава (к.т. Н.Т.33), максимальное значение температуры составило 1550 °С.

На рисунке 1.33 (см. стр. 26) показан слиток расплава, извлеченный из верхней ловушки расплава. Через демпферное устройство в нижнюю ловушку прошло приблизительно 9% расплава или 1,39 кг. На рисунке 1.34 (см. стр. 26) показан расплав, извлеченный из корзины нижней ловушки.



а) вид сверху



б) вид снизу

Рисунок 1.33. Внешний вид слитка расплава из верхней ловушки



Рисунок 1.34. Расплав, извлеченный из корзины нижней ловушки

По результатам визуального осмотра установки и контрольного промера сливной трубы была составлена схема предполагаемого размещения расплава по элементам установки (см. рисунок 1.35).

Выводы

В ходе эксперимента FDCO-8 окись алюминия в плавильном тигле была расплавлена в полном объеме.

Среднее значение мощности ЭПП на максимальном уровне было равно 89,8 кВт. В процессе эксперимента интегральное количество энергии, подведенное к ЭПП, составило 268,2 МДж. Температура расплава в тигле ЭПП перед сливом расплава по показанию ИК - датчика была равна ~ 2150 °С. Предположительно, сливная труба была заполнена натрием до отметки ~ -150 мм. Количество расплава, слившегося из ЭПП в верхнюю ловушку расплава, составило ~ 14,9 кг.

Прохождение части расплава через демпферное устройство зафиксировано. Из корзины нижней ловушки извлечено 1,390 кг расплава или 9% массы всего расплава.

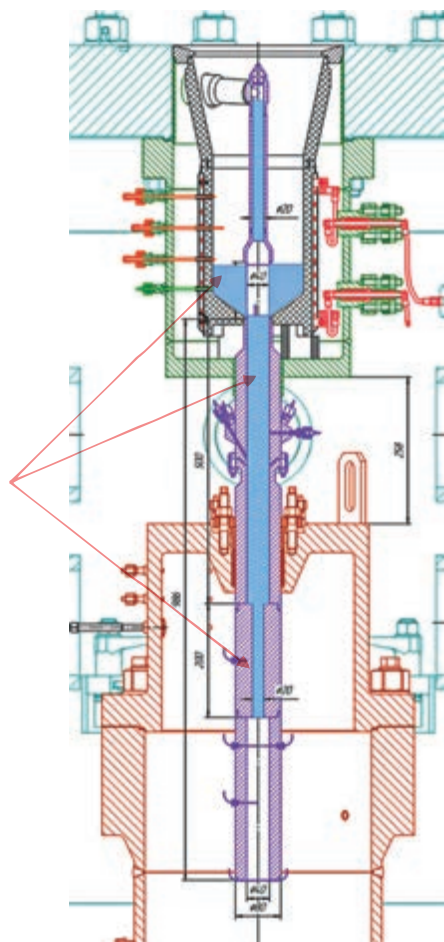


Рисунок 1.35. Схема расположения расплава по сливной трубе после эксперимента FDCO-8. Стрелками показано месторасположение расплава в тигле верхней ловушки и сливной трубе

Эксперименты серии IPCO

Целью экспериментов серии IPCO является экспериментальное определение эффективности охлаждения «модели застывающего кориума» в условиях многократного осушения и повторного залива ее натрием.

Для проведения экспериментальных исследований по определению эффективности охлаждения модели застывающего кориума в условиях многократного осушения и повторного залива натрием на вне реакторном стенде EAGLE разработана экспериментальная секция (рисунок 1.36 на стр. 28), основными элементами которой являются массивная верхняя цилиндрическая часть, играющая роль застывшего кориума (секция «Лотос»), и полая труба, через которую натрий может быть подан к модели кориума и возвращен от нее (далее – труба подвода натрия).

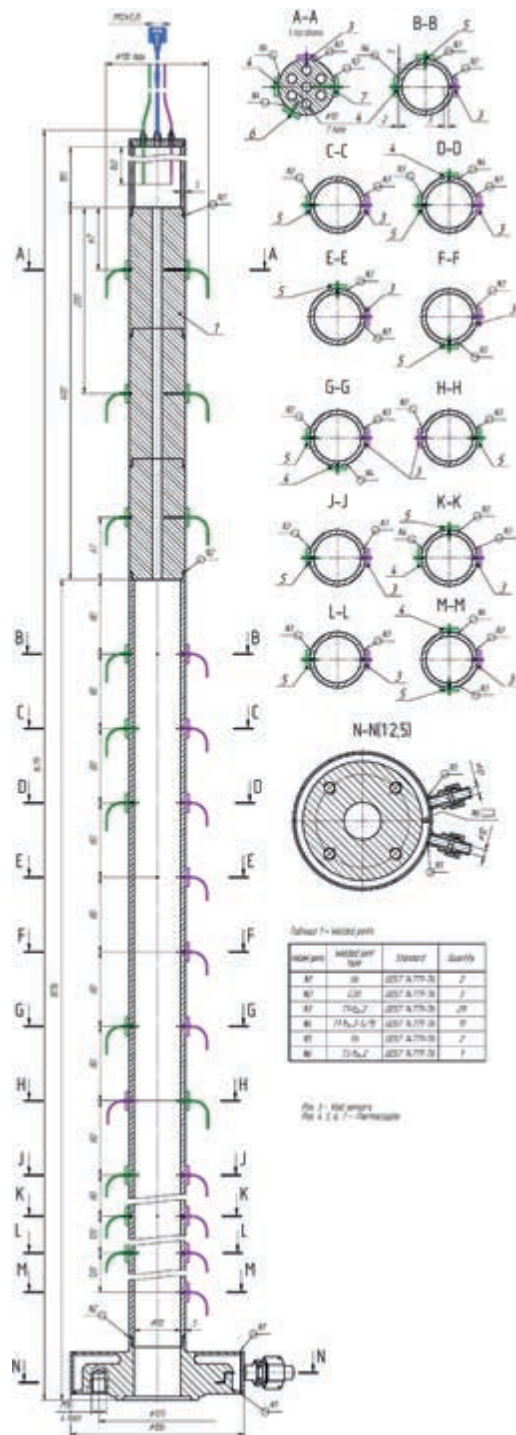


Рисунок 1.36. Конструктивная схема экспериментальной секции для проведения экспериментов серии IPCO

Над верхним торцом модели кориума сформирована полость высотой 185 мм, в которой установлены датчики давления, температуры и пустот. В секции «Лотос» имеются семь сквозных продольных отверстий диаметром 10 мм каждое, просверленных на всю высоту «Лотоса» (400 мм). К секции «Лотос» снизу приварена труба подвода натрия длиной 1076 мм с фланцем для подсоединения пневмоуправляемого шарового крана. На нижнем участке трубы устанавливаются 16 термопар типа ХА, 8 датчиков пустот.

На рисунке 1.37 приведен эскиз установки EAGLE с экспериментальной секцией ИРСО.

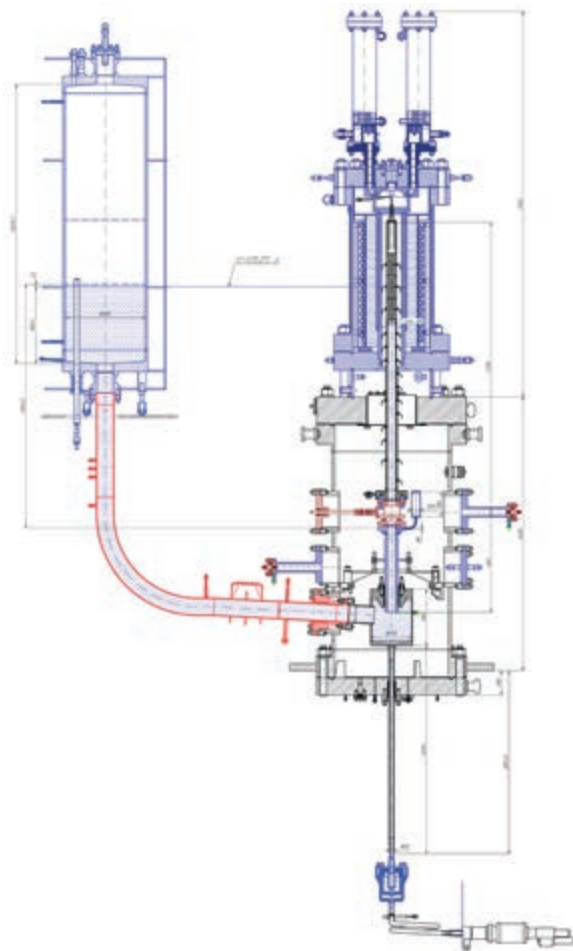


Рисунок 1.37. Эскиз установки EAGLE с экспериментальной секцией для исследования эффективности охлаждения модели застывающего кориума в условиях многократного осушения и повторного залива ее натрием

Нагрев секции «Лотос» осуществляется в тигле ЭПП до заданной температуры (1100 °С). По достижении заданной температуры секции «Лотос» открывается шаровой

кран, и жидкий натрий поступает в трубу подвода натрия, достигает секции «Лотос», где происходит испарение натрия. Вследствие повышения давления в верхней части экспериментальной установки натрий выдавливается из секции «Лотос». Далее происходит конденсация паров натрия со снижением давления в сливной трубе и повторное заполнение натрием секции «Лотос». Этот процесс происходит несколько раз, при этом амплитуда колебания уровня натрия в секции постепенно снижается.

Во время эксперимента регистрируется температура секции, температура трубы подвода натрия, температура натрия, парообразование в натрии, давление в полости трубы подвода натрия. По результатам экспериментов определяются параметры периодического процесса испарения и конденсации натрия и параметры изменения теплового состояния элементов конструкции экспериментальной установки

Эксперименты IPCO-1

Условия проведения эксперимента IPCO-1:

Температура «Лотоса»	1100-1150 °С;
Давление в полости трубы подвода натрия	до 1,0 МПа;
Уровень натрия в буферной емкости	473 мм;
Температура натрия	350 °С;
Общее количество натрия в установке	~ 120 л;
Интегральная тепловая энергия, подводимая к «Лотосу»	150 МДж.

На рисунке 1.38 показано изменение электрических параметров в ЭПП на эксперименте IPCO-1.

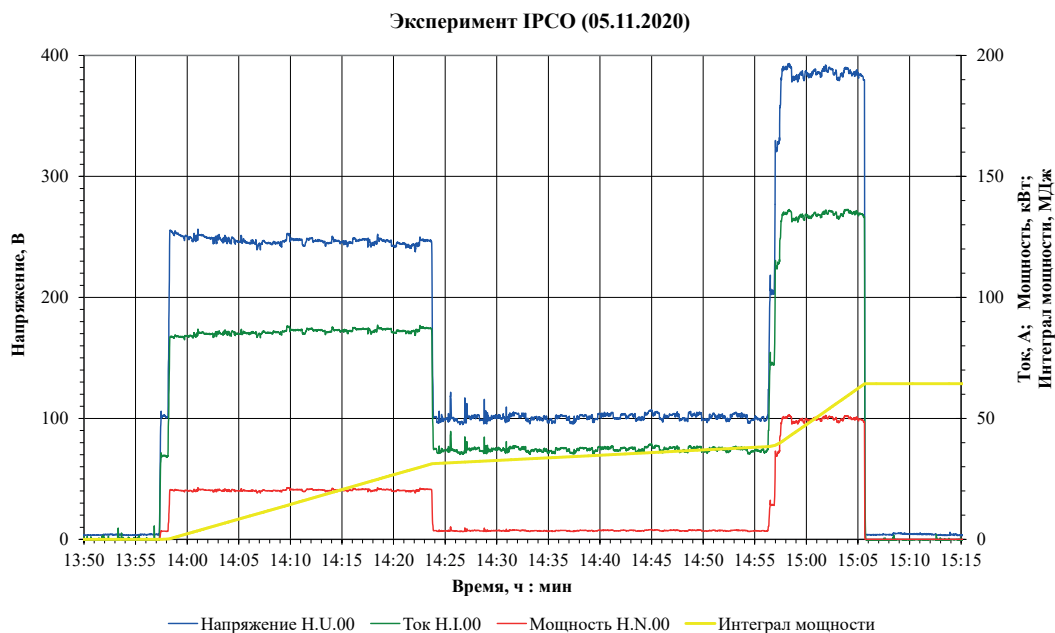


Рисунок 1.38. Изменение электрических параметров ЭПП во время эксперимента IPCO-1

Графики, приведенные на рисунке 1.38, показывают, что электрические параметры ЭПП во время эксперимента были стабильны и находились в заданных пределах. Эксперимент был прекращен при достижении значения, подведенной к ЭПП энергии, равного 64,3 МДж.

На рисунке 1.39 показано изменение температуры в секции «Лотос» во время эксперимента. Как видно из графика, температура материала секции «Лотос», перед подачей натрия в сливную трубу, была равна ~1275 °С.

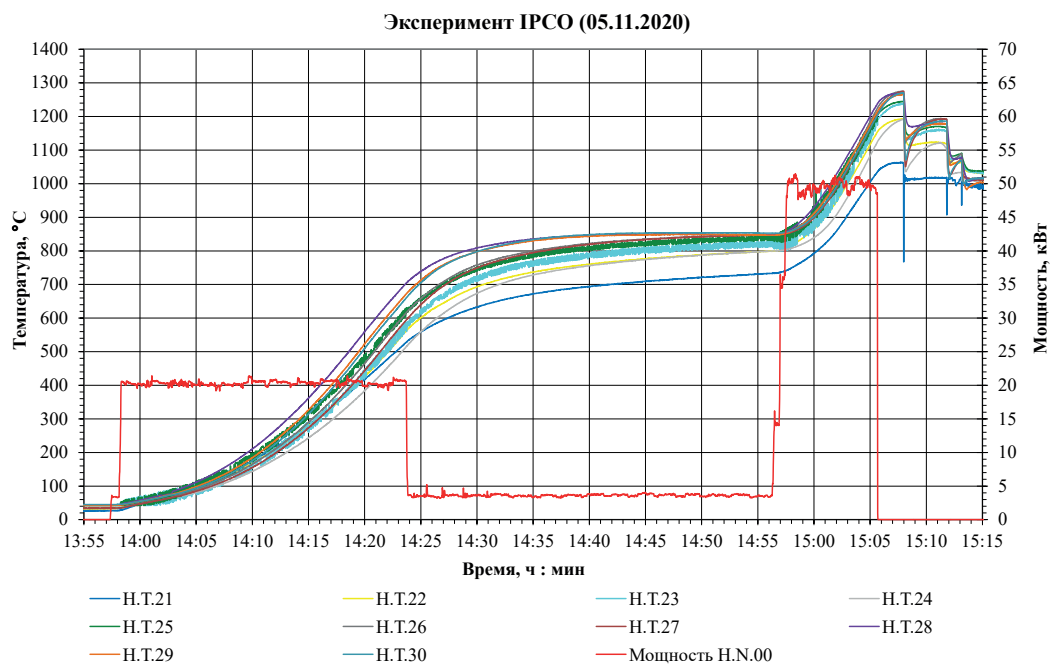


Рисунок 1.39. Изменение температуры секции «Лотос» во время эксперимента IPCO-1

На рисунке 1.40 (см. стр. 32) показано изменение температуры сливной трубы под секцией «Лотос» во время эксперимента. Как видно из графика, температура материала трубы подвода натрия, перед подачей в нее натрия, была равна ~1070 °С.

В ходе эксперимента секция «Лотос» была разогрета до 1100 °С, после чего с помощью быстродействующего пневмоуправляемого клапана в трубу был подан жидкий натрий, который заполнил отверстия секции «Лотос». В результате контакта с разогретой поверхностью натрия в этих отверстиях испарился, и пар вытолкнул натрий вниз по трубе. После конденсации паров натрия уровень натрия снова поднялся, и натрий вновь заполнил отверстия секции «Лотос». Описанный процесс повторялся несколько раз, пока секция «Лотос» не была охлаждена до температуры ниже точки кипения натрия (883 °С). По всей длине трубы и секции «Лотос» были расположены термопары и датчики пустот, которые фиксировали перемещение натрия внутри трубы.

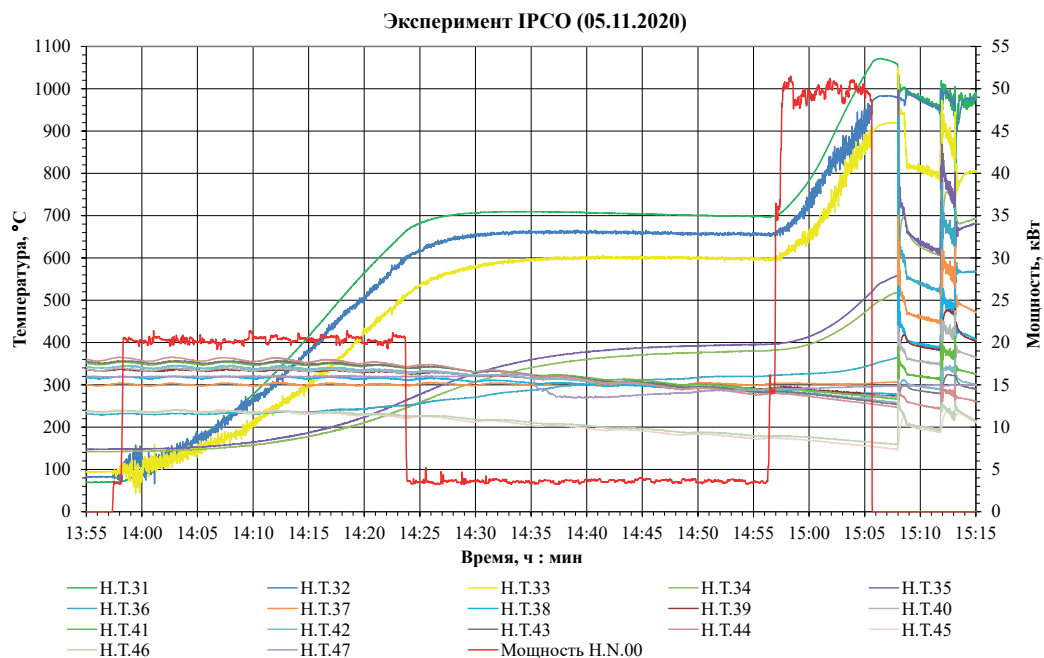


Рисунок 1.40. Изменение температуры трубы подвода натрия в эксперименте IPCO-1

На рисунке 1.41 показано изменение температуры и давления в трубе подвода натрия после открытия пневмоклапана. Видно, что изменения температуры и давления внутри трубы имеют циклический характер.

Выводы

Для эксперимента IPCO конструкция установки EAGLE была модифицирована, так как данный эксперимент кардинально отличается от предыдущих. Эксперимент IPCO не сопровождается плавлением имитатора кориума и последующими манипуляциями с ним. Роль затвердевшего кориума играет металлическая массивная деталь, разогретая до заданной начальной температуры (секция «Лотос»). Конструкция установки была дополнена быстродействующим пневматическим клапаном диаметром проходного сечения 50 мм (время полного открытия составляет 0,56 секунд).

По результатам исследования была получена зависимость уровня натрия по высоте трубы подвода натрия от времени с момента открытия клапана. Колебательный характер изменения уровня натрия связан с циклическими процессами вскипания и конденсации натрия.

Измеренные параметры позволяют определить скорость охлаждения секции «Лотос» при многократном заполнении ее каналов натрием.

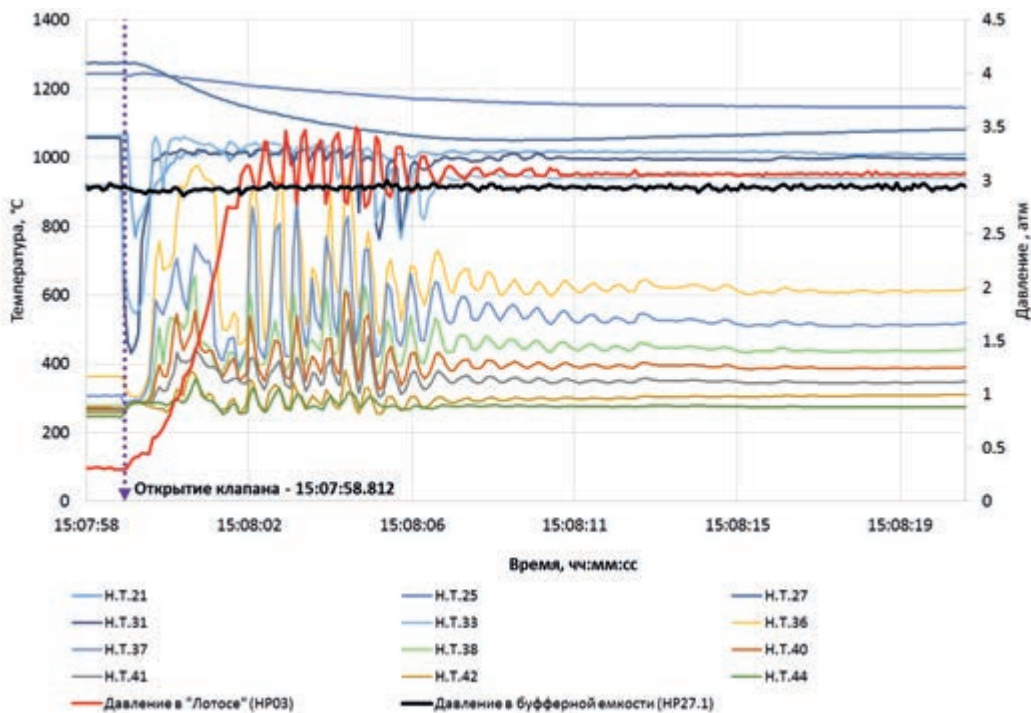


Рисунок 1.41. Изменение температуры и давления в сливной трубе в момент открытия пневмоклапана

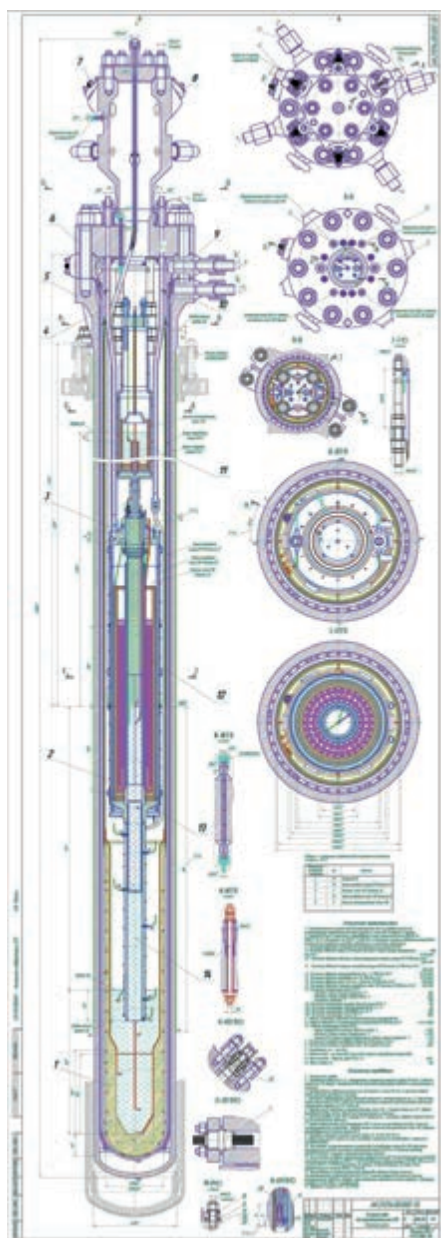
1.2 Внутрореакторные эксперименты

Экспериментальное устройство

Конструкция экспериментального устройства с макетом направляющей трубы стержня СУЗ

Проект экспериментального устройства (ЭУ) с макетом направляющей трубы стержня СУЗ разработан на основе требований к конструкции (техническое задание), предназначенной для плавления материалов модельной ТВС с образованием бассейна расплава, который, согласно сценарию эксперимента, должен проплавить стенки направляющей трубы и переместиться в нижнюю ловушку. Ключевым вопросом, ответ на который должен был дать эксперимент, является вопрос о возможности движения расплава по направляющей трубе при наличии в ней модели демпфера контролирующего стержня, ограничивающего проходное сечение трубы локально по месту установки демпфера (проходное сечение демпфера выбрано из условия обеспечения заданного расхода натрия по направляющей трубе).

В соответствии с проектом [1] было изготовлено ЭУ [2,3] (рисунок 1.42 на стр. 34).



1 – ловушка; 2 – лайнер; 3 – чехол ТВС; 4 – штанга; 5 – ампула ID-M; 6 – крышка ампулы;
 7 – гермопроходник на пятьдесят контактов; 8 – гермопроходник на девятнадцать
 контактов; 9 – корпус внутренний; 10 – корпус наружный; 11 – труба расширительная;
 12 – ТВС; 13 – расходоадающее устройство; 14 – натрий

Рисунок 1.42. ЭУ

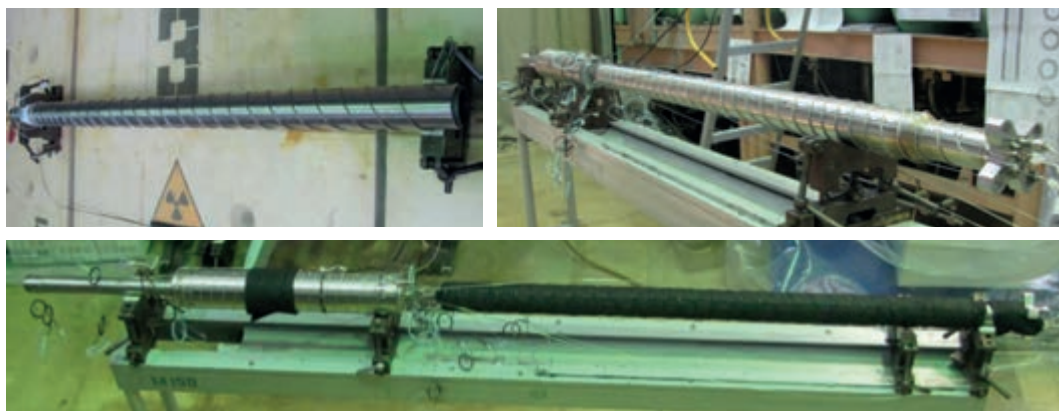
На рисунке 1.43 (стр. 35 - 36) представлены основные этапы и технологические операции процесса сборки ЭУ.



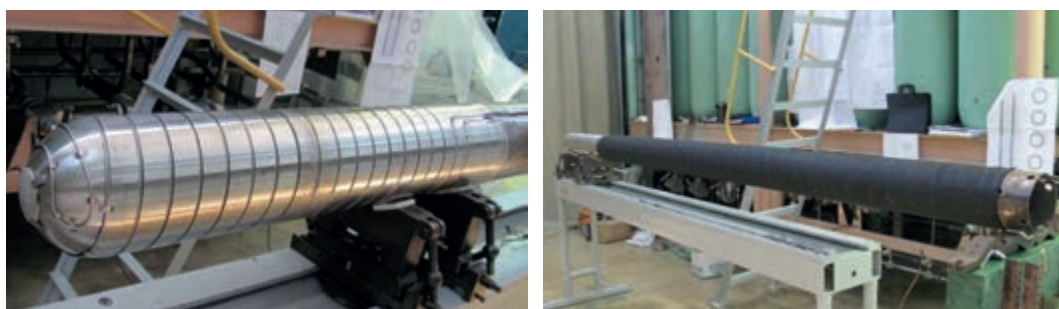
а) процесс сборки ТВС



б) процесс сборки чехла ТВС



в) процесс сборки расширительной трубы



г) процесс сборки ловушки с лайнером



д) процесс сборки корпусов ЭУ

Рисунок 1.43. Основные этапы сборки ЭУ

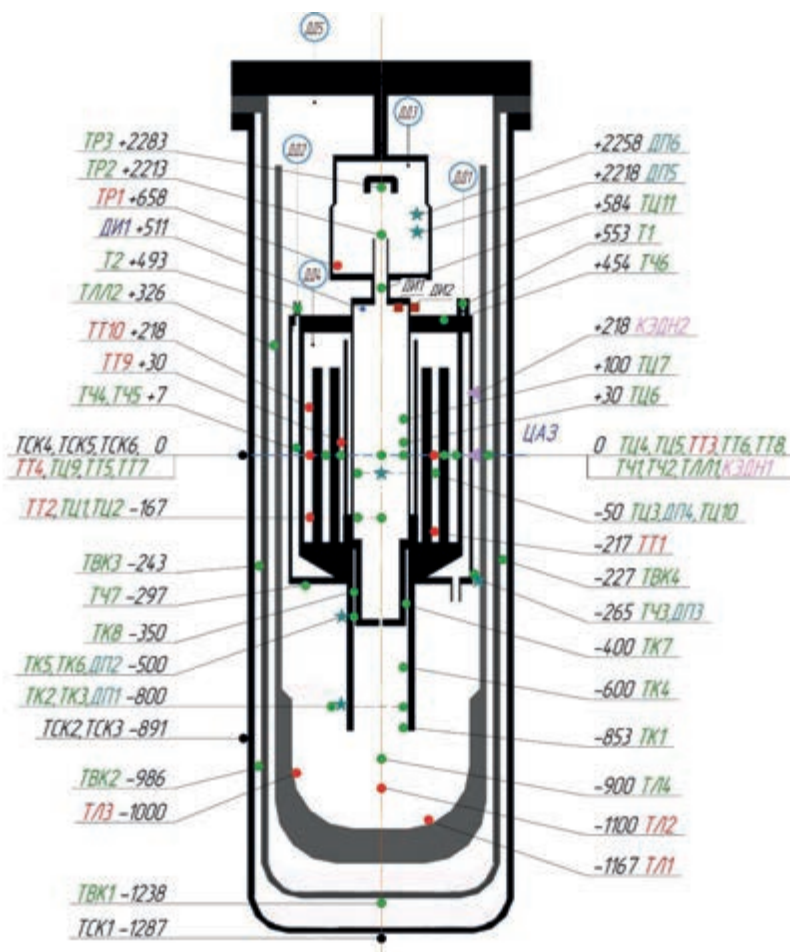
Основные параметры ЭУ, установленного в ЦЭК реактора ИГР, приведены в таблице 1.1.

Таблица 1.1. Технические данные ЭУ

	Наименование	Значение
1	Тепловыделяющая сборка (ТВС)	
1.1	Масса топлива в ТВС (UO_2 с обогащением 17% по ^{235}U), кг	~ 5,62
1.2	Масса топлива бланкетной части ТВС (UO_2 с обогащением 0,27% по ^{235}U), кг	~ 0,56
1.3	Масса изотопа UO_2 в ТВС, кг	~ 6,2
1.4	Высота активной части ТВС, мм	
–	внешний ряд твэлов	~435
–	внутренний ряд твэлов	~385
1.5	Высота бланкетной части ТВС, мм	
–	внешний ряд твэлов	~15
–	внутренний ряд твэлов	~65
2	Тракт охлаждения чехла ТВС	
2.1	Давление азота на входе, кгс/см ²	≤20
2.2	Расход азота, кг/с	0,05
3	Электрические нагреватели	
3.1	Мощность нагревателя на расширительной трубе, Вт	до 1500
3.2	Мощность нагревателя на чехле ТВС, Вт	до 3000
3.3	Мощность нагревателя на сливной трубе, Вт	до 2000
3.4	Мощность нагревателя на ловушке, Вт	до 2000
4	Ампула ID	
	Тракт охлаждения	
4.1	Давление на входе в тракт охлаждения ампулы, кгс/см ²	≤20
4.2	Расход азота в тракте охлаждения ампулы, кг/с	0,2
	Силовой корпус	
4.3	Материал	сталь 15X1M1Ф
4.4	Рабочее внутреннее давление, кгс/см ²	≤140
4.5	Рабочая температура стенки корпуса (на участке 2000 мм от дна), °С	≤350
4.6	Рабочая температура крышки ампулы, °С	≤70
	Внутренний корпус	
4.7	Материал	сталь 15X1M1Ф
4.8	Рабочее давление в полости корпуса, кгс/см ²	≤70
4.9	Рабочая температура стенки корпуса, °С	≤450
5	Натрий	
5.1	Общая масса натрия, кг	9,87

Системы измерения параметров

Схема размещения датчиков контроля параметров в ЭУ приведена на рисунке 1.44.



ТТ1 – ТТ10 – датчики температуры в ТВС; ТЧ1 – ТЧ7 – датчики температуры чехла ТВС; ТК1 – ТК8 – датчики температуры сливной трубы; ТЦ1 – ТЦ11 – датчики температуры в центральной трубе с двойной стенкой; Т1, Т2 – датчики температуры азота на входе и выходе из тракта охлаждения чехла ТВС; ТР1 – ТР3 – датчики температуры в расширительной трубе; ТЛ1 – ТЛ4 – датчики температуры в ловушке; ТЛЛ1, ТЛЛ2 – датчики температуры наружной поверхности лайнера; ТВК1 – ТВК4 – датчики температуры внутреннего корпуса; ТСК1 – ТСК6 – датчики температуры силового корпуса; ДД1 – датчик давления на входе в тракт охлаждения; ДД2 – датчик давления на выходе из тракта охлаждения; ДД3 – датчик давления в расширительной трубе; ДД4 – датчик давления в полости чехла ТВС; ДД5 – датчики давления в полости силового корпуса; ДИ1, ДИ2 – датчик импульса давления; ДП1 – ДП6 – датчики измерения пустот в натрии; КЭДН1, КЭДН2 – комптоновский эмиссионный детектор нейтронов

Рисунок 1.44. Схема размещения первичных преобразователей в ЭУ

Регистрация параметров эксперимента осуществлялась системой сбора данных на базе штатной СТК КИР ИГР.

Сигналы датчиков импульса давления и датчиков пустот были записаны в устройства запоминания локальных систем регистрации. Регистрация опорных сигналов от локальных систем была осуществлена в штатной СТК.

Сигналы части первичных преобразователей регистрировались с использованием КСУ, а также выводились на показывающие приборы оперативного визуального контроля.

В ходе проведения эксперимента была обеспечена синхронизация работы основных и локальных систем (регистрация параметров в режиме единого времени).

Физические и методические исследования с экспериментальным устройством

На основании результатов расчетного анализа режимов испытаний и результатов физических исследований, выполненных с использованием макета ЭУ [4], была определена диаграмма изменения мощности реактора ИГР в эксперименте. При реализации этой диаграммы предполагалась следующая последовательность событий:

- разогрев топливных таблеток за счет внутреннего энерговыделения;
- плавление топлива и оболочек твэлов вследствие внутреннего энерговыделения в топливе;
- образование бассейна расплавленной стали и топлива в полости ТВС;
- разрушение центральной трубы, имеющей двойную стенку и моделирующей направляющую трубу стержня регулирования, и проникновение расплава топлива и стали в полость, заполненную натрием;
- контакт расплава с имитатором демпфера стержня СУЗ;
- движение расплава через канал внутри макета демпфера в ловушку.

После загрузки ЭУ в ЦЭК реактора ИГР был проведен калибровочный пуск, целью которого было определение соотношения между энерговыделением в мониторе, установленном в ЭУ, и энерговыделением в активной зоне реактора ИГР, а также калибровка нейтронных камер СУЗ реактора ИГР и комптоновских эмиссионных детекторов нейтронов.

Калибровочный пуск был проведен в режиме «Вспышка» с начальным скачком реактивности $\rho_0 = 1,82 \text{ \$}$, энерговыделение в активной зоне реактора составило 300 МДж [5]. Диаграмма изменения тока ионизационной камеры реактора в пуске представлена на рисунке 1.45 (см. стр. 40).

Перед пуском был осуществлен предварительный разогрев натрия в полости расширительной трубы до температуры $\sim 150 \text{ }^\circ\text{C}$ и в центральной трубе до $\sim 160 \text{ }^\circ\text{C}$.

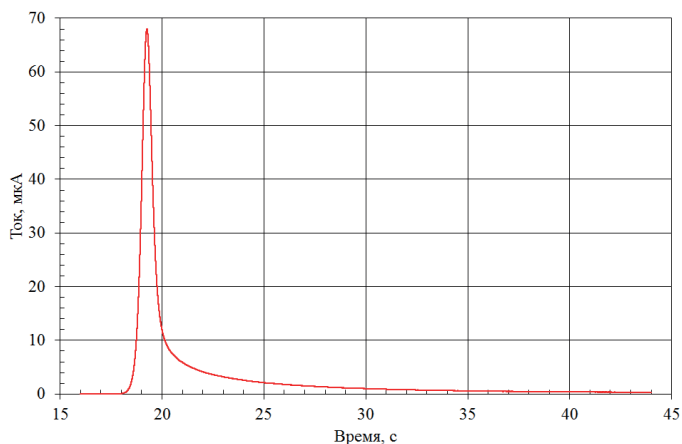


Рисунок 1.45. Диаграмма изменения тока ИК15 в пуске

Параметры ЭУ при проведении калибровочного пуска приведены в таблице 1.2.

Таблица 1.2. Параметры ЭУ при проведении калибровочного пуска

Наименование		Количественное или качественное значение параметра
1	Топливо	
1.1	Энерговыделение в топливе, кДж/г UO_2	0,35
1.2	Максимальная температура в топливе, °С	752
2	Полость чехла ТВС	
2.1	Среда	аргон, натрий
2.2	Начальное давление, кгс/см ²	1
2.3	Начальная температура в полости трубы сливной, °С	90±10
2.4	Начальная температура в полости трубы центральной, °С	160±10
2.5	Начальная температура в полости трубы расширительной, °С	150±10
3	Тракт охлаждения чехла ТВС	
3.1	Давление на входе (абс.), кгс/см ²	1
3.2	Расход азота, кг/с	0
4	Монитор энерговыделения	
4.1	Масса монитора (UO_2 с обогащением 0,27% по ^{235}U), г	~2,7
5	Тракт охлаждения ампулы ID	
5.1	Давление на входе (абс.), кгс/см ²	1
5.2	Расход азота, кг/с	0
5.3	Начальная температура, °С	20±10
6	Внутренний корпус	
6.1	Среда	аргон
6.2	Начальное давление в полости корпуса (абс.), кгс/см ²	1
6.3	Начальная температура, °С	20±10

Диаграмма изменения показаний термопар, установленных в ТВС, в калибровочном пуске, представлены на рисунке 1.46.

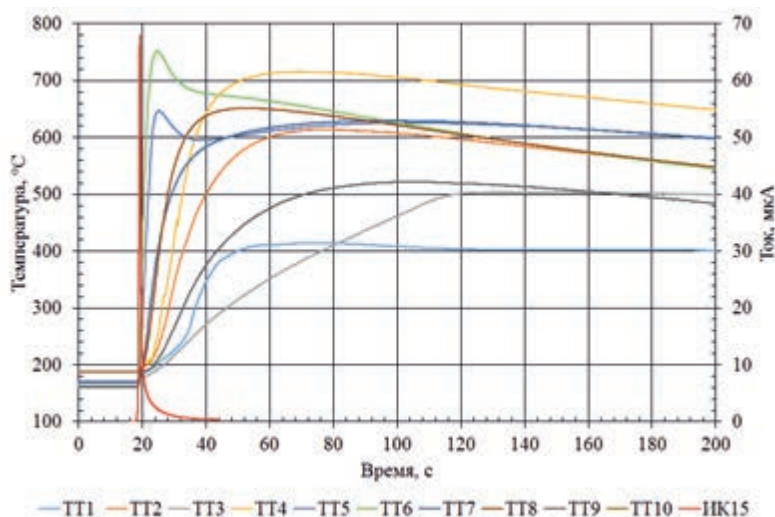


Рисунок 1.46. Показания термопар, установленных в ТВС

После проведения калибровочного пуска из устройства был извлечен монитор энерговыделения и проведены спектрометрические исследования [6], по результатам которых было определено значение отношения удельного энерговыделения в мониторе к энерговыделению в активной зоне реактора ИГР. Данная величина составила $7,6 \times 10^{-8}$ Дж/г(UO₂)/Дж (ИГР).

Исследовательский пуск с экспериментальным устройством

Условия исследовательского пуска

Исследовательский пуск с ЭУ был проведен на реакторе ИГР в соответствии с требованиями программы [7].

Перед проведением исследовательского пуска был выполнен предварительный разогрев ЭУ и установлен уровень натрия в расширительной трубе в интервале от +2218 мм до +2258 мм (ДП5 находится в натрии, ДП6 сухой). Уровень натрия в ЭУ обеспечивался за счет перепада давления между полостью внутреннего корпуса (ДД5' 2,86 кгс/см²) и полостью трубы расширительной (ДДЗ' 0,28 кгс/см²). В тракты охлаждения ЭУ был подан азот в расходном режиме. Температура топлива перед пуском составляла 370±10 °С, натрия в расширительной трубе 270±10 °С, в сливной трубе 400±30 °С, в ловушке 350±20 °С.

Пуск был реализован в режиме «Регулируемый импульс». Энерговыделение в реакторе составило 3,4 ГДж, максимальная мощность – 410 МВт, диаграмма ее изменения показана на рисунке 1.47 [8] (см. стр. 42). При этом температура активной зоны реактора изменилась с 20 °С до 708 °С.

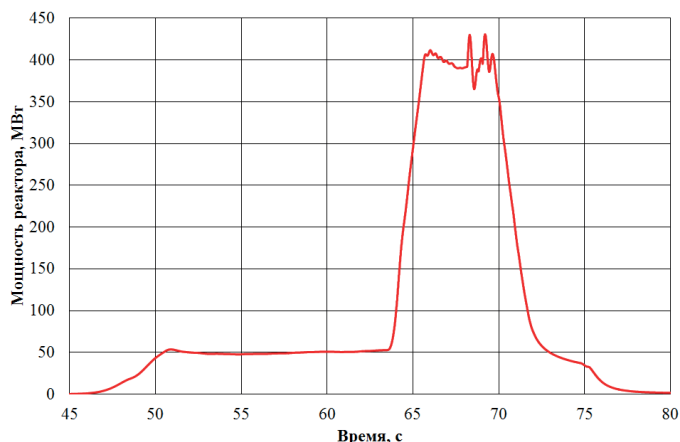


Рисунок 1.47. Диаграмма изменения мощности реактора ИГР в исследовательском пуске

Результаты исследовательского пуска

Интерпретация показаний термопар и датчиков давления

Реализация диаграммы мощности началась на 42 с от момента, принятого за начало пуска.

На 65,1 с термопара ТТ4, расположенная на оболочке твэла на уровне ЦАЗ, показывает повышение температуры до значения 1427 °С (рисунок 1.48). Этот момент времени можно принять за время начала плавления оболочек твэлов.

Спустя ~ 0,5 с (65,6 с) от момента начала плавления оболочек твэлов наблюдается резкий рост и такой же резкий спад (65,8 с) показаний термопары ТТ1, установленной на оболочке твэла внутреннего ряда топлива, принимая во внимание данный факт, этот момент времени (65,8 с) можно принять за время начала плавления топливных таблеток.

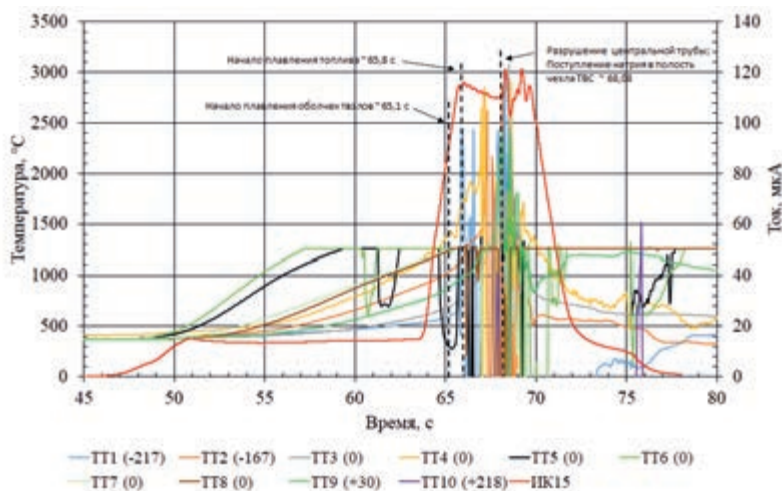
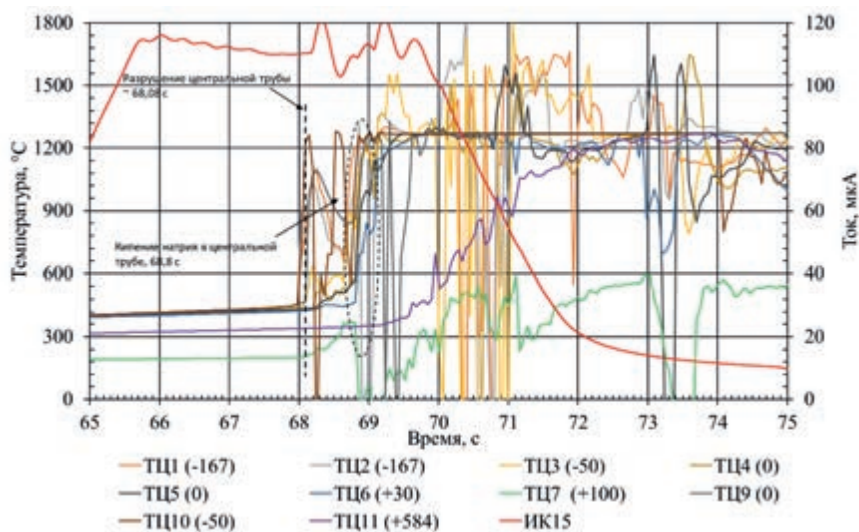
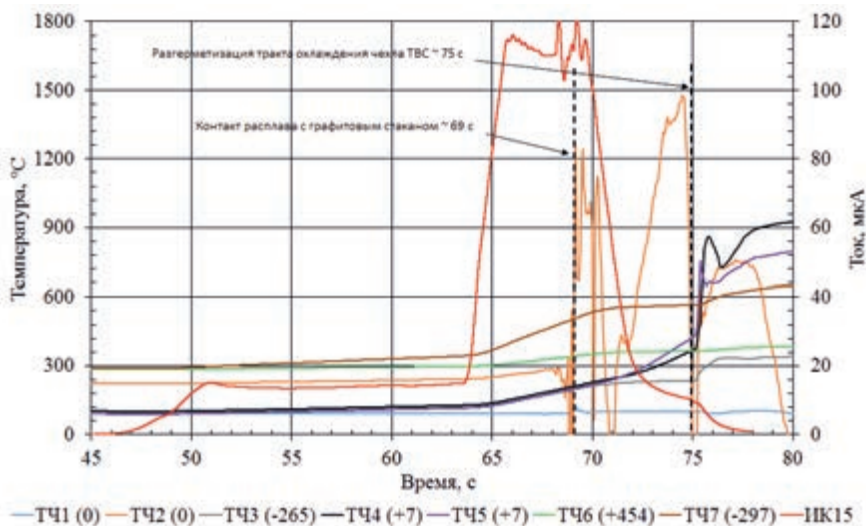


Рисунок 1.48. Показания термопар, установленных в ТВС

На 67,97 с наблюдается резкий рост показаний термопары ТЦ10 «-50 мм», который длится до 68,08 с, далее значения данной термопары падают вниз, что свидетельствует о выходе из строя этой термопары, которое вызвал расплав топлива, попавший на термопару. В связи с этим, момент времени 68,08 с можно принять за момент полного разрушения центральной трубы на уровне расположения расплава (рисунок 1.49).



Резкий рост показаний термопары ТЧ2 на ~ 69 с свидетельствует о контакте расплава с графитовым стаканом (рисунок 1.50).



По характеру показаний датчиков давления в чехле ТВС и в полости внутреннего корпуса в районе 75 с (рисунок 1.51, 1.52) можно утверждать, что в это время произошла разгерметизация полости чехла ТВС.

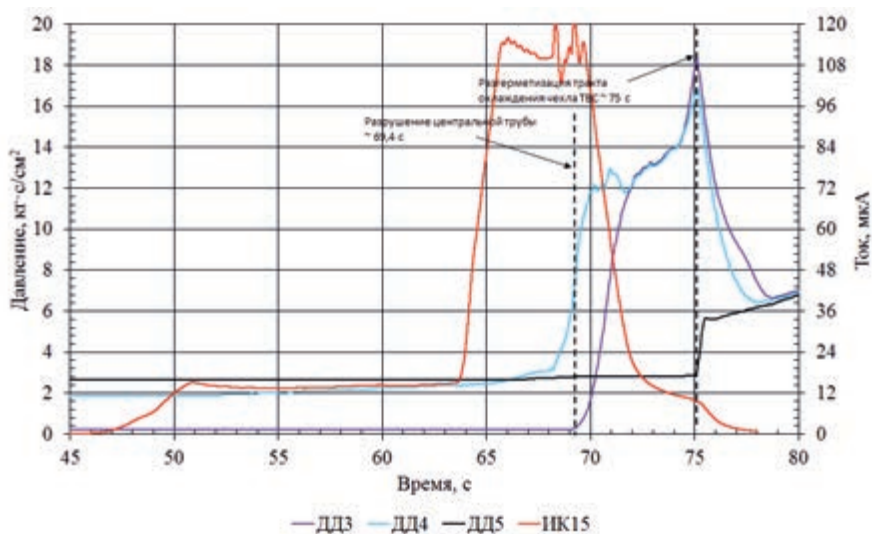


Рисунок 1.51. Показания датчиков давления с 45 с по 80 с

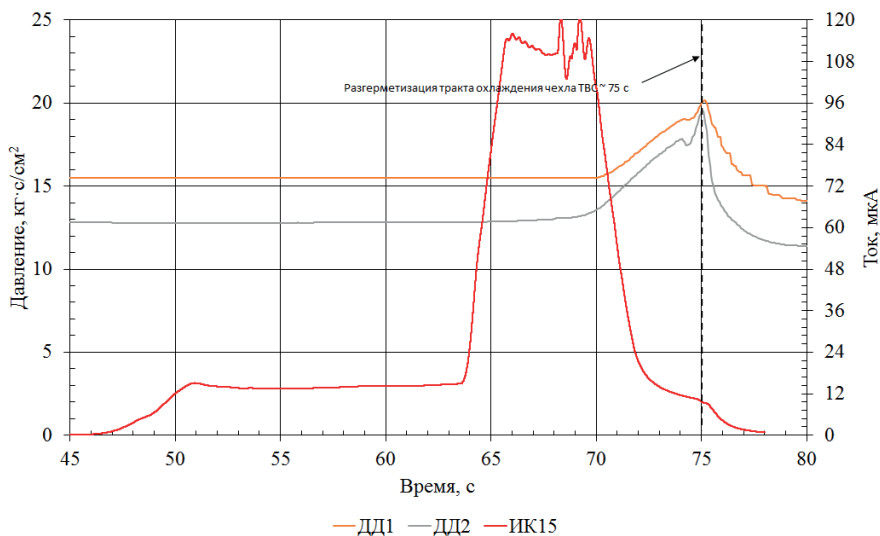


Рисунок 1.52. Показания датчиков давления, установленных в тракте охлаждения чехла ТВС

На 68,2 с происходит рост показаний термопар ТК7 «← 400 мм», ТК8 «← 350 мм», обусловленный выходом расплава из полости чехла ТВС в центральную трубу и движением расплава вниз в направлении расходозадающего устройства (рисунок 1.53).

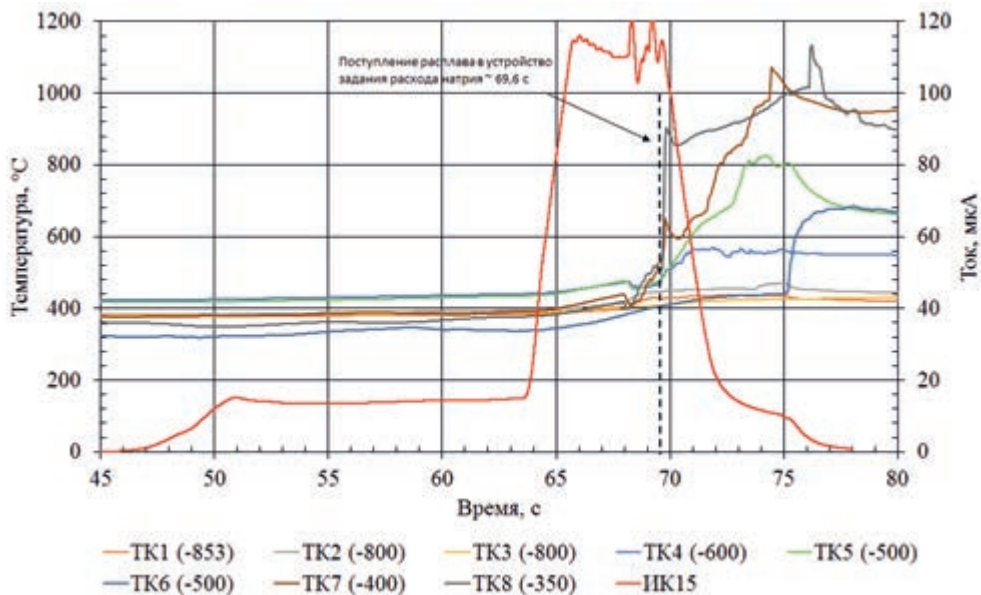


Рисунок 1.53. Показания термопар, расположенных в сливной трубе

В момент времени 69,13 с термопары ТР2 «+ 2213 мм», ТР3 «+ 2283 мм», установленные в расширительной трубе (рисунок 1.54), реагируют резким ростом показаний на взаимодействие расплава с натрием и на выброс небольшого количества расплава с натрием в полость расширительной трубы.

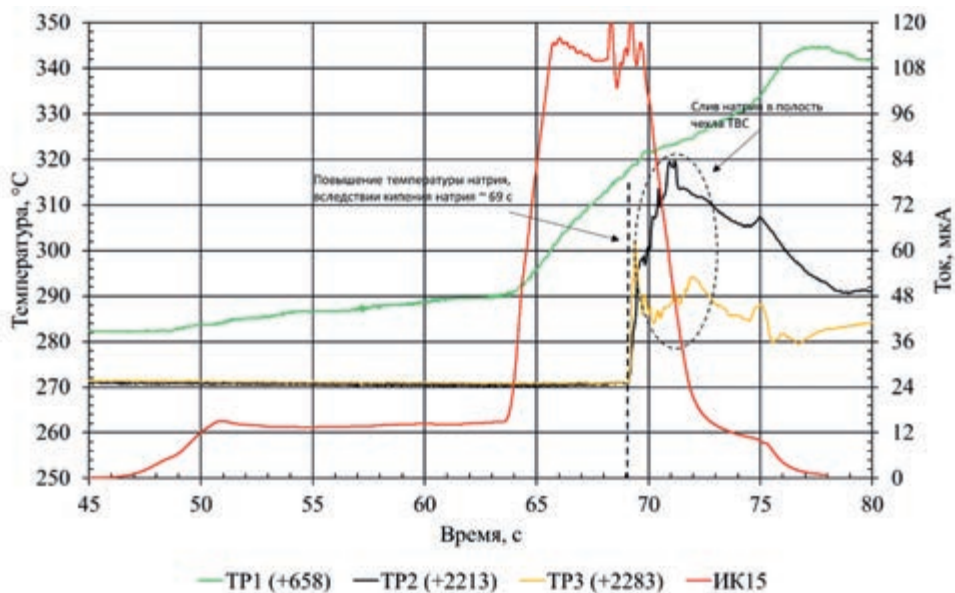


Рисунок 1.54. Показания термопар, расположенных в расширительной трубе

По показаниям термопар, установленных на внутреннем и наружном корпусах ампулы, можно сделать следующие предположения (рисунок 1.55): после разгерметизации тракта охлаждения чехла ТВС на 75,1 с происходит контакт расплава с внутренним корпусом ампулы, что подтверждается ростом показаний термопары ТВК4, установленной на отметке «+ 227 мм» от ЦАЗ на наружной поверхности внутреннего корпуса. В период времени с 75,1 с по 75,32 с происходит плавление внутреннего корпуса ампулы. На 75,32 с начинается резкий рост показаний термопары ТСК5 «0», который обусловлен контактом расплава с наружным корпусом ампулы. Далее, в период времени с 75,32 с по 75,85 с происходит плавление стенки наружного корпуса, и алюминиевой стенки внутреннего корпуса ампулы НА228. В период времени с 75,85 с по 76,16 с фиксируется резкий спад показаний термопар ТСК4 «0 мм», ТСК5 «0 мм» и ТСК6 «0 мм», что может быть связано с попаданием воды в щелевой зазор между НА228 и ЭУ из контура охлаждения ампулы НА228.

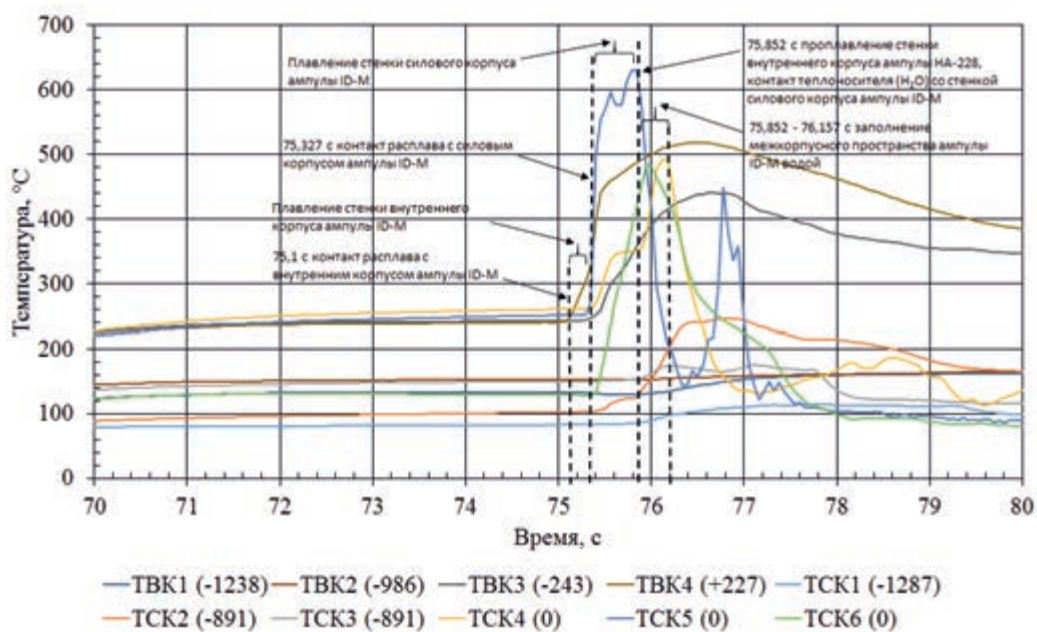


Рисунок 1.55. Показания термопар, расположенных во внутреннем и наружном корпусе

Интерпретация показаний датчика импульса давления

В соответствии с показаниями датчика импульса давления ДИ1, в момент времени 69,06 с в натрии имел место импульс давления ~ 3,76 МПа. Это событие связано с взаимодействием расплава с натрием. Происходит выброс натрия в расширительную емкость, обусловленный кипением и испарением натрия в центральной трубе (рисунок 1.56).

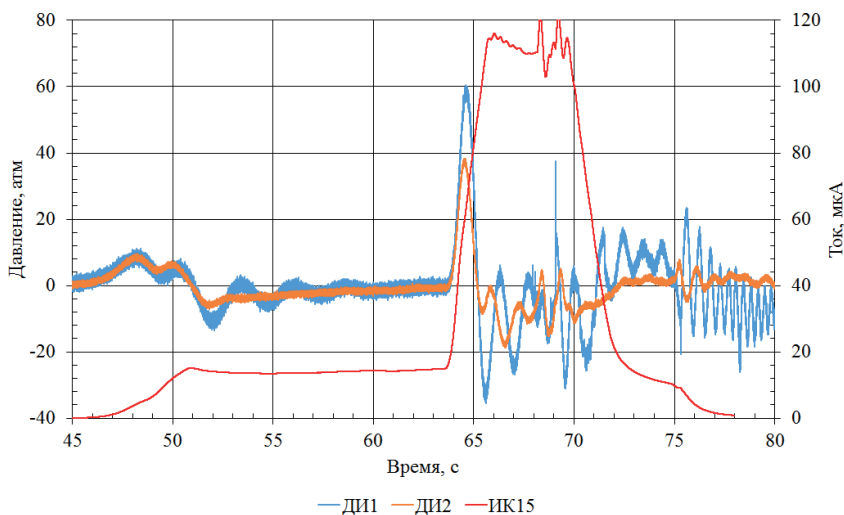


Рисунок 1.56. Результаты измерений датчиков импульса давления

Интерпретация показаний датчиков пустот

Графики изменения показаний сигналов напряжений на датчиках пустот с наложением графика изменения тока в ионизационной камере (ИК15) представлены на рисунке 1.57. Из рисунка 1.57 видно, что рабочие сигналы датчиков пустот ДП1, ДП4, ДП5 и ДП6 на момент пуска реактора находятся на уровне от 2 мВ до 10 мВ – датчики в натрии; датчики пустот ДП2 и ДП3 на уровне 30 мВ и 45 мВ – датчики в газовой полости.

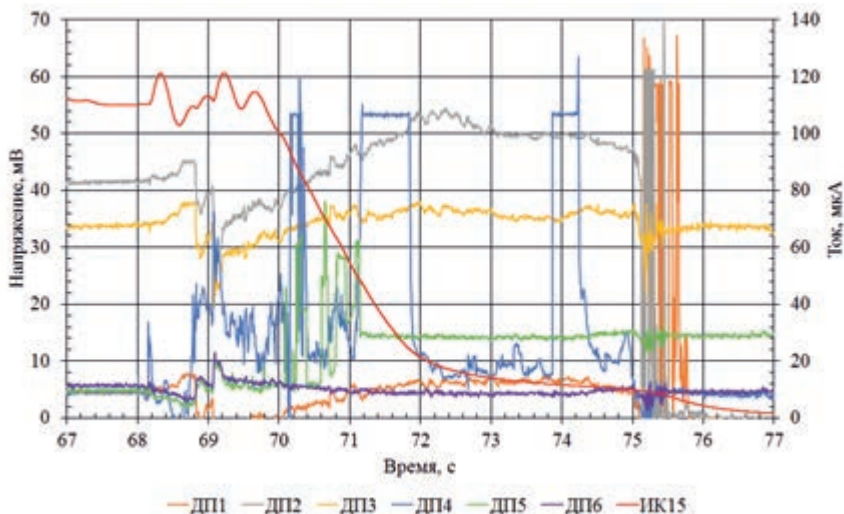


Рисунок 1.57. Диаграммы изменения рабочих сигналов датчиков пустот в период времени с 67 с по 77 с

С момента времени 68,16 с и до 75 с быстрой регистрации показания напряжения и тока на датчиках пустот ДП1 и ДП2 (рисунок 1.58) изменяются от минус 10 мВ до 10 мВ и от 24 мА до 54 мА, соответственно, что можно объяснить откликом на кипение натрия в центральной трубе.

В момент времени 68,82 с датчик давления ДИ1 фиксирует импульс длительностью около 10 мс и амплитудой 0,5 МПа. В этот момент времени датчики пустот ДП1, ДП2, ДП3 и ДП4 фиксируют снижение уровня напряжения почти до 10 мВ, что, вероятнее всего, связано с воздействием на датчик избыточного давления, которое кратковременно воздействовало механически на чувствительную часть датчиков, тем самым изменяя его амплитудно-частотные характеристики (сопротивление и емкость кабеля).

В момент времени 69,06 с датчик давления ДИ1 фиксирует два импульса длительностью около 10 мс и максимальной амплитудой 4,0 МПа. В этот момент времени показания датчиков пустот ДП1, ДП2 и ДП3 фиксируют снижение уровня напряжения почти до 20 мВ, что, вероятней всего, связано с воздействием на датчик избыточного давления. При этом датчик ДП4, наоборот, фиксирует повышение напряжения до 40 мВ – образуется газовая полость.

Необходимо заметить, что датчик пустот ДП2 до 75 с остается в газовой среде, т.е. не погружен в натрий. С момента времени с 75,1 с по 75,74 с наблюдаются большие колебания как напряжения, так и тока датчиков пустот ДП1 и ДП2, это, скорее всего, связано с разрушением чехла ТВС и попаданием фрагментов расплава на датчики.

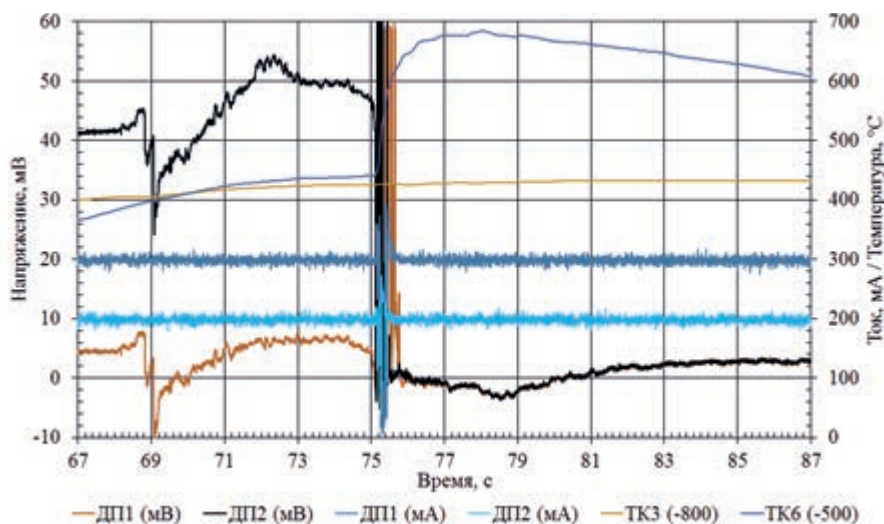


Рисунок 1.58. Показания датчиков пустот ДП1 и ДП2

На протяжении всего эксперимента показания напряжения и тока на датчике пустот ДП3 практически не изменяются (рисунок 1.59). Это обстоятельство можно объяснить тем, что датчик был установлен на рубашке охлаждения чехла ТВС, на отметке «-265 мм» от ЦАЗ и натрий не достиг этого уровня.

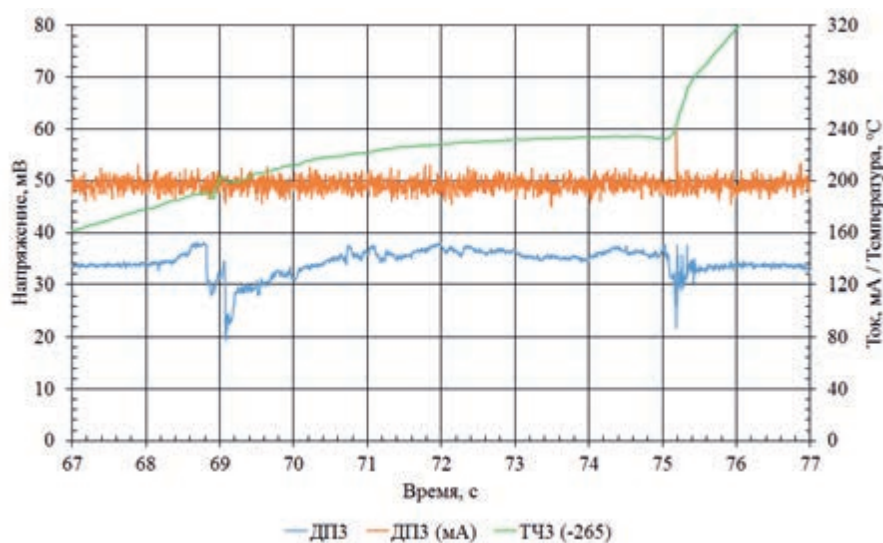


Рисунок 1.59. Показания датчика пустот ДПЗ

С момента времени 67,92 с датчик пустот ДП4 и термопары ТЦ1, ТЦ2 фиксируют изменение напряжения и температуры, что свидетельствует об образовании бассейна расплава и начале плавления наружной стенки центральной трубы (рисунок 1.60). С момента времени 68,08 с по 69,4 с датчик пустот ДП4 фиксирует скачкообразное изменение напряжения, что свидетельствует о взаимодействии расплава с натрием. В момент времени 70,15 с показания датчика ДП4 по напряжению возрастают и выходят за диапазон измерения, а показания тока уменьшаются до 180 мА, следовательно, датчик разрушается в этот момент времени.

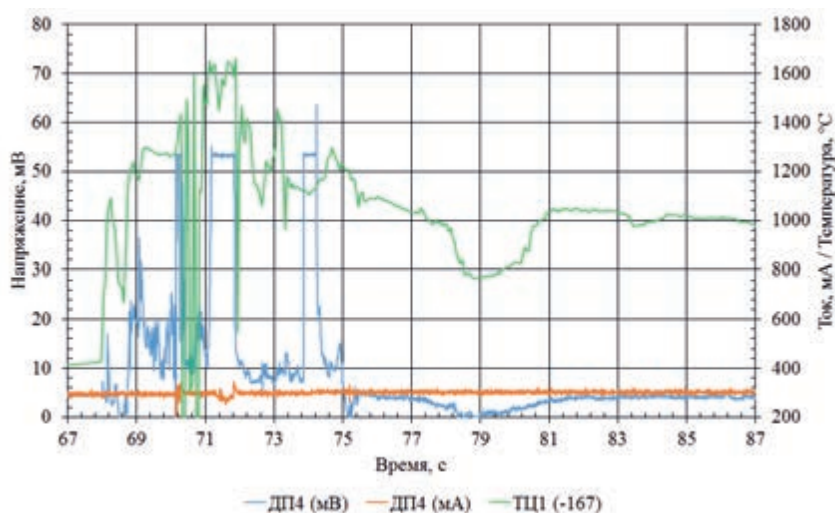


Рисунок 1.60. Показания датчика пустот ДП4

С момента времени 70 с и до 71,2 с быстрой регистрации напряжения на датчике пустот ДП5 (рисунок 1.61) изменяется от 6 мВ до 38 мВ, что можно объяснить сливом натрия, находящегося в расширительной трубе, в полость ТВС. С момента времени 71,2 с и до конца режима быстрой регистрации напряжение на датчике пустот ДП5 стабилизируется на уровне 20 мВ, что можно объяснить полным сливом натрия из расширительной трубы в полость чехла ТВС и осушением чувствительной части датчика пустот.

Показания датчика пустот ДП6 на протяжении всего эксперимента оставались практически неизменными, что свидетельствует либо о контакте чувствительной части датчика с отбойником, установленным в полости расширительной трубы, либо об образовании окисной пленки на чувствительной части датчика.

Отсутствие колебания токового сигнала является свидетельством того, что датчики пустот ДП5 и ДП6 оставались целыми на протяжении всего эксперимента.

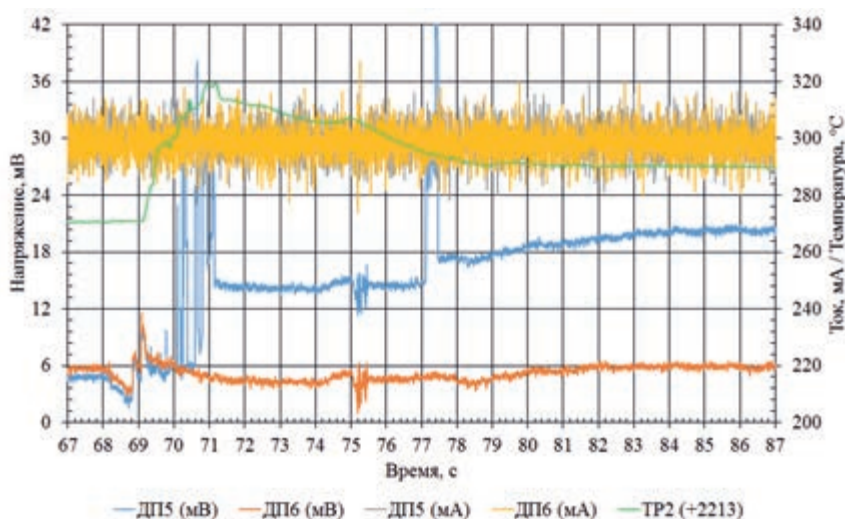


Рисунок 1.61. Показания датчиков пустот ДП5 и ДП6

Интерпретация показаний комptonовских эмиссионных детекторов нейтронов

Измеренные значения токов нейтронных детекторов были обработаны по следующему алгоритму [9]:

- нормирование токов КЭДН на индивидуальное значение интеграла тока (рисунок 1.62);
- нормирование полученных значений на нормированное значение тока камеры ИК15 (рисунок 1.63);
- получение первой производной от нормирования полученных значений на нормированное значение тока камеры ИК15 (рисунок 1.64).

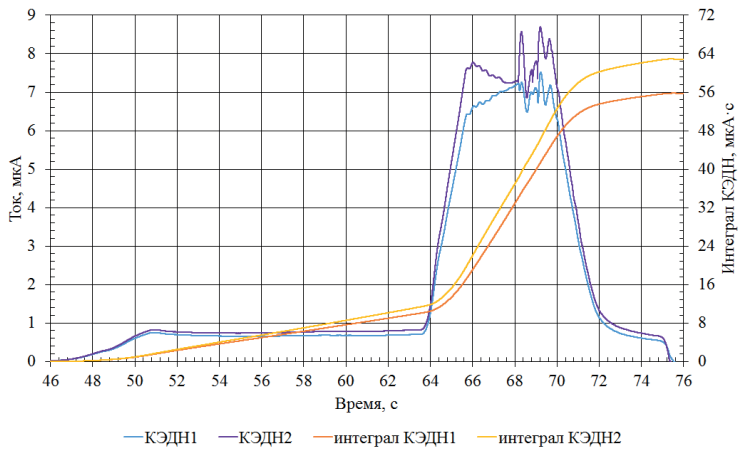


Рисунок 1.62. Токи КЭДН и интегралы токов

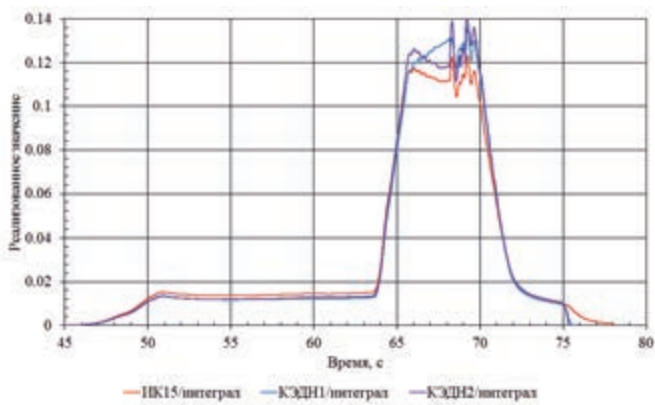


Рисунок 1.63. Токи КЭДН, нормированные на интегралы токов

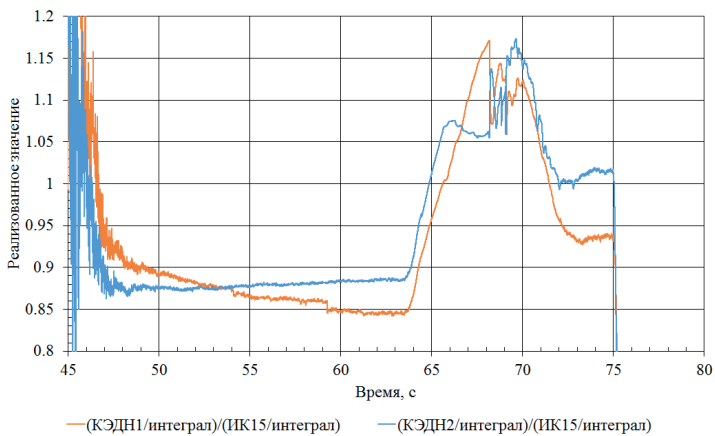


Рисунок 1.64. Токи КЭДН, предварительно нормированные на интегралы токов, повторно нормированные на ток ИК, предварительно нормированные на интеграл

Анализ показаний КЭДН дает следующую картину (рисунок 1.64). С ~ 65,6 с эксперимента в зоне действия КЭДН1 «0 мм» и КЭДН2 «+218 мм» отмечаются колебания потока нейтронов, связанные с тем, что к этому моменту в ТВС формируются области с плавлением оболочек твэлов. На ~ 65,8 с КЭДН регистрируют процесс плавления топлива и обрушение топливного столба.

После проплавления стенки внутренней трубы, зафиксированного термопарами на ~68,08 с, в полости ТВС началось бурное взаимодействие расплава с натрием. При этом часть расплава из полости ТВС переместилась в полость внутренней трубы. Это предположение подтверждается показаниями детекторов, а именно резким, практически одновременным, снижением сигналов КЭДН на 69,7 с.

Обобщение результатов эксперимента

На основании интерпретации результатов регистрации средств измерения параметров ЭУ была установлена предполагаемая последовательность основных событий, имевших место в процессе проведения эксперимента:

- ~ 45 с – начало реализации диаграммы мощности реактора ИГР;
- ~ 65,1 с – начало плавления оболочек твэлов;
- ~ 65,8 с – начало плавления топлива;
- ~ 67,97 с – контакт расплава с центральной трубой;
- ~ 68,08 с – разрушение центральной трубы;
- ~ 68,19 с – выход части расплава из полости ТВС в полость центральной трубы;
- ~ 74,72 с – завершение диаграммы мощности реактора ИГР;
- ~ 75 с – разгерметизация тракта охлаждения чехла ТВС (разрушение внутренней стенки чехла ТВС);
- ~ 75 с – выход части расплава из чехла ТВС, падение фрагментов в ловушку;
- ~ 75,1 с – контакт расплава с внутренним корпусом;
- ~ 75,32 с – разрушение внутреннего корпуса, контакт расплава с силовым корпусом;
- ~ 75,85 с – разрушение силового корпуса ампулы ID-M и внутреннего корпуса ампулы HA228;
- ~76,16 с – заполнение межкорпусного пространства ампулы водой.

Послереакторные разрушающие исследования экспериментального устройства

Перед проведением послереакторных разрушающих исследований была проведена процедура нейтрализации натрия, находящегося во внутренних полостях ЭУ. Удаление натрия осуществлялось после установки ЭУ на специальной оснастке и подключения к «Системе удаления натрия», путем заполнения внутренних полостей нейтрализующим раствором. Для приготовления нейтрализующего раствора использовались вода питьевая (ГОСТ 2274-82) и спирт этиловый (ГОСТ 5962-2013).

В процессе проведения нейтрализации осуществлялся контроль давления и температуры во внутренних полостях ЭУ, а также концентрации щелочи в нейтрализующем растворе.

Разделка чехла ТВС ЭУ в РЗК

В процессе разделки испытательной секции путем осуществления поперечного реза чехол ТВС со сливной трубой был отстыкован от трубы расширительной. Далее процесс разделки полученных конструктивных элементов испытательной секции проходил в два этапа:

- этап первый – разделка чехла ТВС со сливной трубой;
- этап второй – разделка трубы расширительной и отбойника.

Разделка чехла ТВС и сливной трубы выполнялась по схеме, приведенной на рисунке 1.65. В процессе разделки были выполнены поперечные резы №1, №2, затем продольный рез №3.

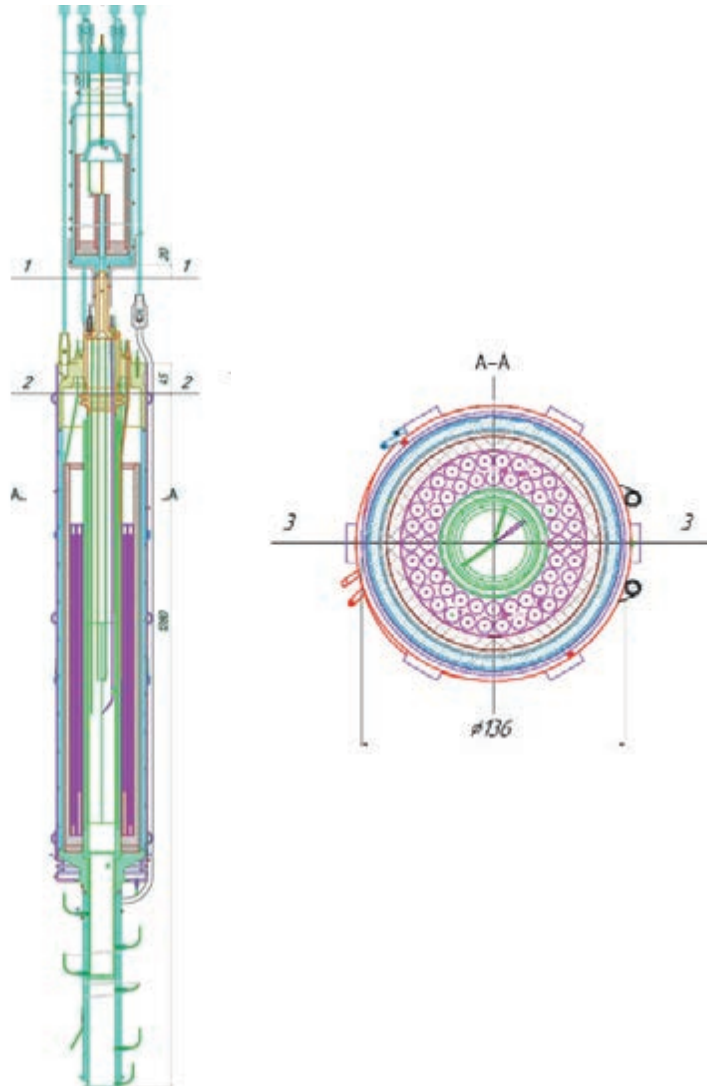


Рисунок 1.65. Схема выполнения резов чехла ТВС и сливной трубы

Результаты разделки чехла ТВС со сливной трубой приведены на рисунке 1.66 и рисунке 1.67.



Рисунок 1.66. Внешний вид чехла ТВС после выполнения резов № 1 и № 2

Затем внутренние полости чехла ТВС и трубы расширительной были заполнены эпоксидной смолой. После затвердевания эпоксидной смолы в РЗК был выполнен продольный рез №3 чехла ТВС со сливной трубой (рисунок 1.67).



Рисунок 1.67. Внешний вид чехла ТВС после продольного реза № 3

После выполнения продольного реза чехла ТВС было проведено гамма-сканирующее исследование с целью определения распределения топлива в полости чехла. На рисунке 1.68 приведено распределение скорости счета $I(E, h)$ для линии 756 кэВ изотопа ^{95}Zr и линии 1332 кэВ изотопа Co-60 для различных уровней (горизонтальных сечений) чехла ТВС.

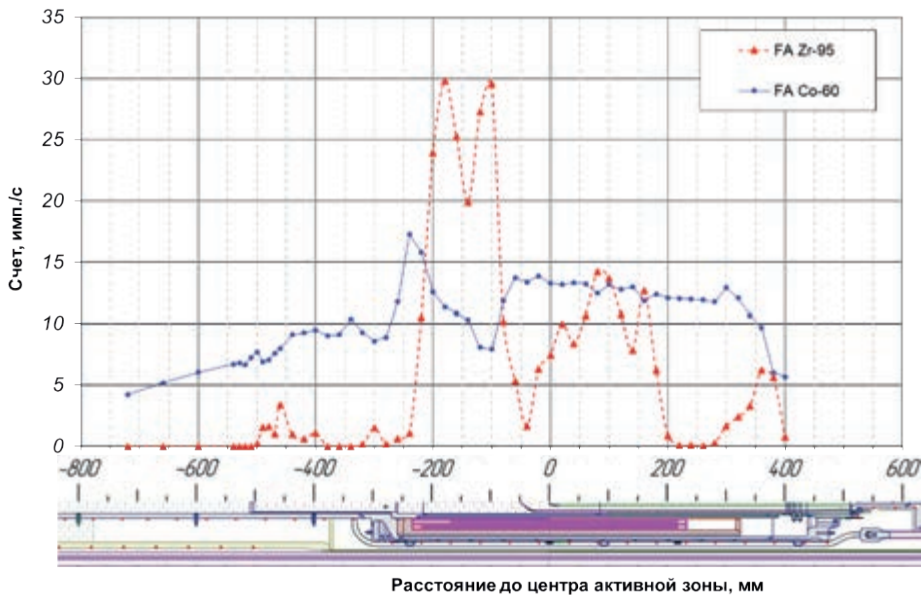


Рисунок 1.68. Распределение по высоте чехла ТВС скорости счета линии 756 кэВ (^{95}Zr) и 1173 (^{60}Co)

По полученному распределению скорости счета для линии ^{95}Zr (относительной активности продуктов деления) можно сделать вывод о наличии расплава топлива в полости чехла ТВС на уровнях $-200 \dots -100$ мм и $0 \dots 200$ мм. Характерный максимум наблюдается также на уровне $-500 \dots -450$ мм (место установки имитатора устройства задания расхода).

Для получения представления о распределении фрагментов топлива в чехле ТВС ЭУ были проведены автордиографические исследования частей чехла ТВС, полученных после продольного реза.

Результаты автордиографических исследований приведены на рисунке 1.69.

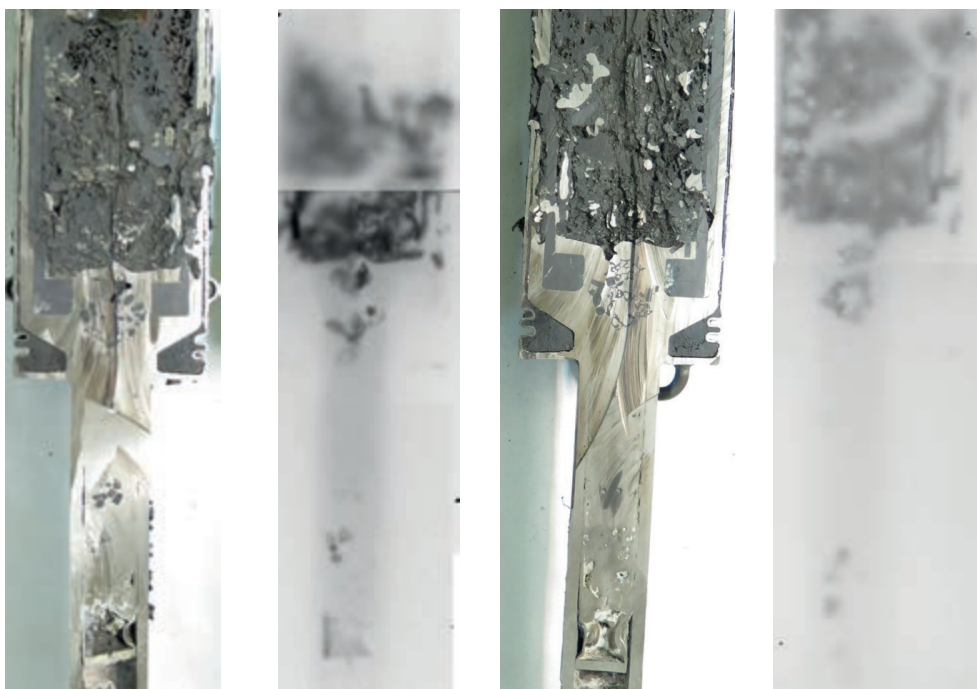


Рисунок 1.69. Радиографические исследования чехла ТВС ЭУ

На полученных радиографических снимках (фото справа) темные области в изображении свидетельствуют о наличии топлива и соответствуют его распределению в общей массе застывшего расплава. Хорошо видно, что топливо практически отсутствует в полости макета демпфера стержня СУЗ, что является свидетельством блокировки проходного канала макета расплавом стали после ее охлаждения.

Разделка трубы расширительной ЭУ в РЗК

При выполнении работ по разделке трубы расширительной ЭУ выяснилось, что она заполнена натрием, который не провзаимодействовал с нейтрализующим раствором. В целях удаления натрия из внутренней полости трубы в боковой стенке было сделано несколько отверстий диаметром 10 мм, после чего труба была подвергнута повторной процедуре нейтрализации натрия. По окончании процедуры нейтрализации было проведено взвешивание расширительной трубы, масса которой составила 24,056 кг. Расчетная масса трубы расширительной составляет 23,994 кг.

Разделка трубы расширительной выполнялась по схеме, приведенной на рисунке 1.70. В процессе разделки были выполнены поперечныерезы №№1-4, затем продольный рез №5.

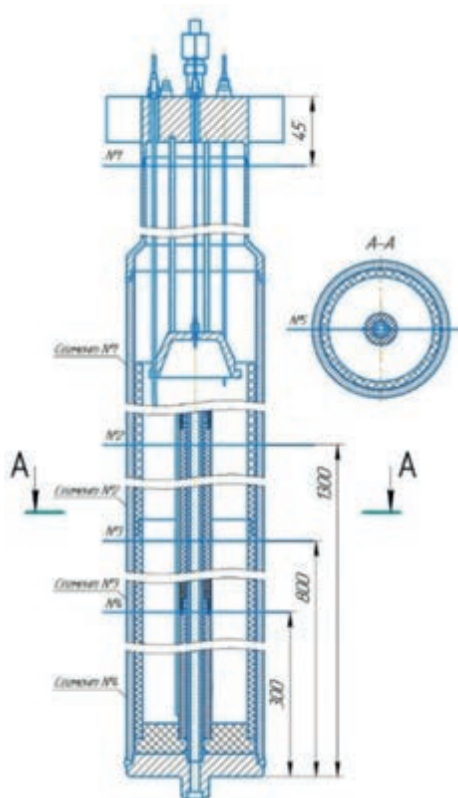


Рисунок 1.70. Схема выполнения резов трубы расширительной

Результаты разделки трубы расширительной представлены на рисунке 1.71.



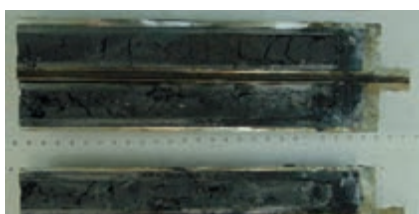
а)



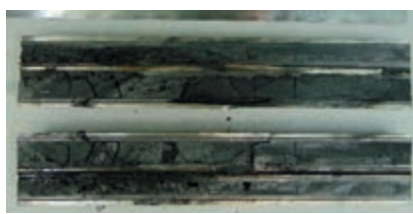
б)

Рисунок 1.71. Труба расширительная до (а) и после (б) выполнения поперечных резов №№1-4

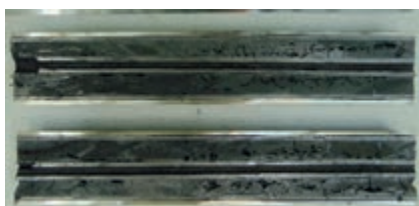
Рез №5 был выполнен для сегментов №№1-4 (рисунок 1.72 на стр. 58), полученных в результате поперечных резов №№1-4.



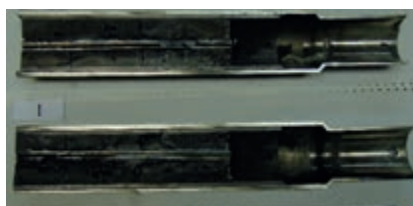
а) внешний вид сегмента №4



б) внешний вид сегмента №3



в) внешний вид сегмента №2



г) внешний вид сегмента №1

Рисунок 1.72. Внешний вид сегментов №№1-4 после выполнения реза №5

После разделки трубы расширительной было проведено гамма-сканирующее исследование с целью определения распределения топлива в её полости.

На рисунке 1.73 приведено распределение скорости счета $I(E, h)$ для линии 765 изотопа ^{95}Nb для различных уровней (горизонтальных сечений) трубы расширительной.

По полученному распределению скорости счета для линии ^{95}Nb можно сделать вывод о наличии фрагментов расплава топлива в полости трубы на уровне 1500... 1575 мм.

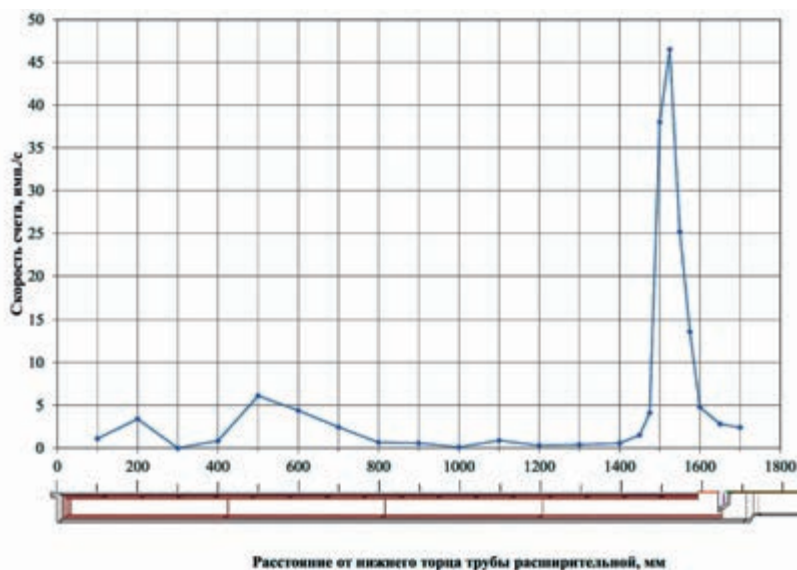


Рисунок 1.73. Распределение по высоте трубы скорости счета линии 765 кэВ (^{95}Nb)

На рисунке 1.74 приведено распределение по высоте сегментов №1 и №2 трубы расширительной скорости счета $I(E, h)$ для линии 662 кэВ изотопа ^{137}Cs . Можно отметить, что в области от 1475 мм до 1575 мм наблюдается характерный подъем кривых.

Анализируя полученные распределения скорости счета для линии ^{137}Cs (относительной активности продуктов деления), можно сделать вывод об увеличении количества (относительной активности) ^{137}Cs на уровне 1500... 1600 мм, где наблюдается характерный максимум на отметке 1525 мм.

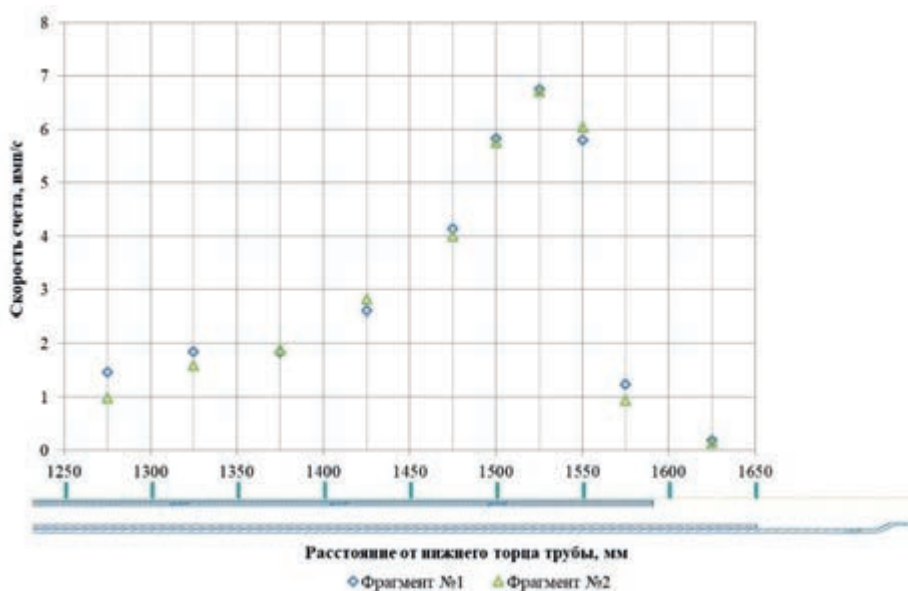


Рисунок 1.74. Распределение по высоте трубы скорости счета линии 662 кэВ (^{137}Cs)

Согласно схеме, приведенной на рисунке 1.75а, был выполнен осевой рез отбойника, предварительно извлеченного из трубы расширительной. Результаты разделки отбойника трубы расширительной представлены на рисунке 1.75б.



Рисунок 1.75. Схема реза (а) и внешний вид после разделки отбойника трубы расширительной (б)

С целью идентификации фрагментов, застывших на внутренней поверхности отбойника, были проведены его гамма-спектрометрические исследования. На рисунках 1.76 и 1.77 представлены спектры гамма-излучения от фрагментов отбойника.

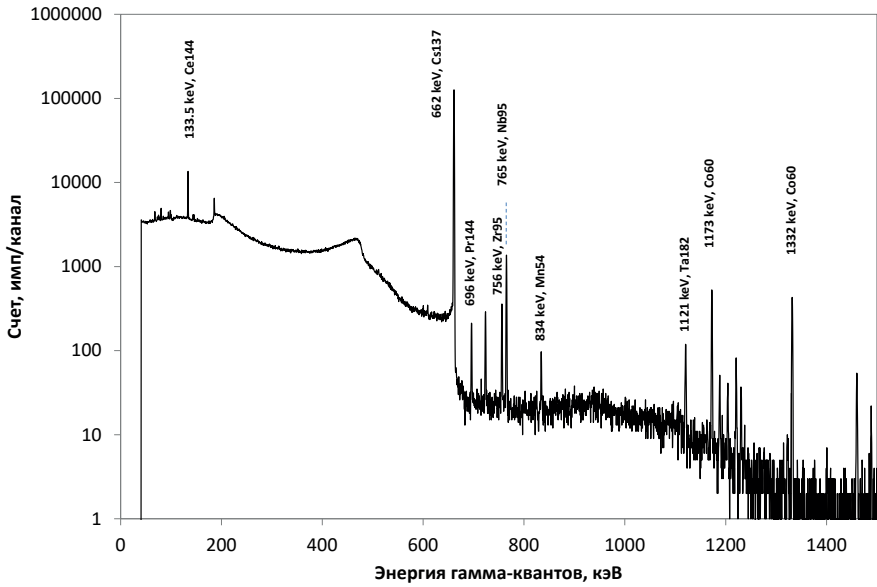


Рисунок 1.76. Спектры гамма-излучения от фрагмента отбойника №1

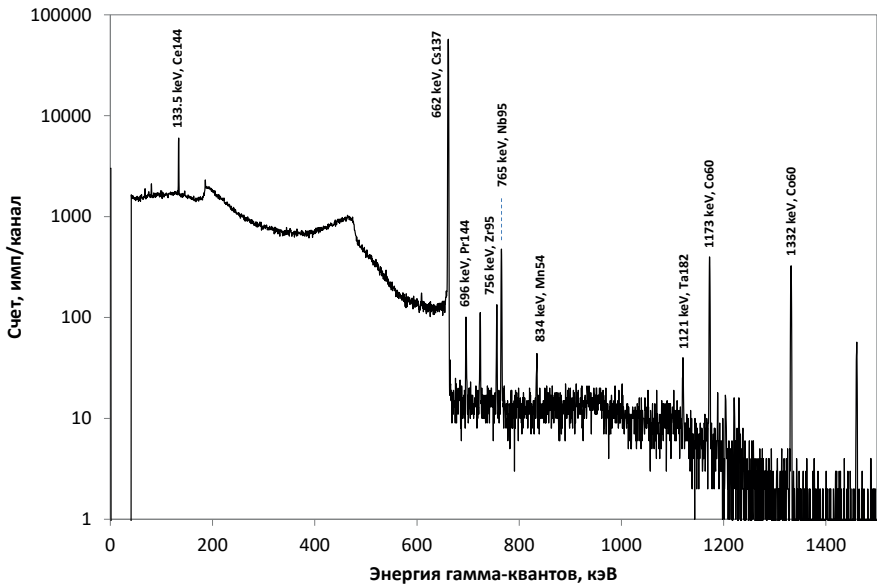


Рисунок 1.77. Спектры гамма-излучения от фрагмента отбойника №2

В спектре гамма-излучения фрагмента отбойника присутствуют линии ПД – 756 кэВ (Zr-95), 765 кэВ (Nb-95), 662 кэВ (Cs-137), 133,5 кэВ (Ce-144), 696 кэВ (Pr-144) и продуктов активации – 834 кэВ (Mn-54), 1173 кэВ (Co-60), 1332 кэВ (Co-60), 1121 кэВ (Ta-182), таким образом, результаты выполненного спектрального анализа позволяют сделать вывод о наличии фрагментов топлива внутри отбойника.

Заключение

Проведен внутриреакторный эксперимент по изучению масштабов разрушения расплавом внутренней трубы с двойной стенкой, заполненной натрием, с установленным внутри демпфером стержня СУЗ.

В процессе подготовки и проведения эксперимента была обеспечена реализация всех заданных программой испытаний условий, обеспечена регистрация более чем семидесяти параметров ЭУ.

Получены экспериментальные данные по параметрам разрушения расплавленными материалами внутренней трубы с двойной стенкой, охлаждаемой натрием, и данные по параметрам перемещения расплава по направляющей трубе стержня регулирования с установленным в ней демпфером стержня.

Представлены результаты калибровочного пуска, параметры ЭУ и реактора в процессе проведения исследовательского пуска. Проведен анализ полученных в ходе эксперимента данных. Приведено описание процессов, протекающих в ЭУ в ходе испытаний, основанное на интерпретации показаний средств измерений.

В результате проведенных разрушающих исследований получена визуальная информация о внутреннем состоянии элементов конструкции испытательной секции ЭУ после испытаний на реакторе ИГР.

Визуальный осмотр состояния элементов конструкции испытательной секции и внутренних полостей показал, что:

- имеется сквозное боковое проплавление стенок чехла ТВС ЭУ;
- внутренняя труба чехла ТВС разрушена, предположительно на уровне образования бассейна расплава топлива и стали;
- сечение трубы сужающейся, соединяющей чехол ТВС и трубу расширительную, не перекрыто расплавом;
- сливная труба сохранила свою целостность, на внутренней поверхности фрагменты расплава не наблюдаются;
- в донной части чехла ТВС наблюдается скопление застывшего расплава с нерасплавленными топливными таблетками, частично разрушен графитовый стакан чехла ТВС;
- движение расплавленного кориума было остановлено моделью демпфера, при этом внутренняя полость модели демпфера почти полностью заполнена застывшим расплавом стали.

Результаты послепериментальных неразрушающих и разрушающих исследований ЭУ, предназначенного для изучения процесса разрушения расплавом материалов активной зоны внутренней трубы с двойной стенкой, охлаждаемой натрием и

оснащенной моделью демпфера стержня СУЗ, подтвердили выводы, сделанные ранее на основании интерпретации показаний средств измерений параметров. Детальный осмотр состояния внутренних элементов наглядно продемонстрировал тот факт, что в ходе эксперимента кориум проплавил внутреннюю двойную стальную трубу, заполненную натрием, и переместился в ее полость. Далее, модель демпфера стержня СУЗ, установленная в нижней части чехла ТВС, не позволила расплаву переместиться в нижнем направлении по сливной трубе, в результате чего расплавом были частично разрушены конструкции испытательной секции в радиальном направлении. На основании полученных данных можно сделать вывод, что примененная в ЭУ конструкция демпфера стержня СУЗ препятствует выведению кориума из активной зоны. Результаты проведенных исследований имеют прикладное значение и могут быть использованы при моделировании процессов, происходящих при развитии тяжелой аварии в реакторе на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ К ГЛАВЕ 1

1. Экспериментальное устройство: технический проект: АК.21254.00.000 / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 24.02.2017.– Инв. № К-53442.
2. Об окончании сборки и готовности экспериментального устройства к загрузке в ЦЭК реактора ИГР : акт / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 07.09.2018.– Уч. №Э/485.
3. Экспериментальное устройство : паспорт / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 07.09.2018.– Уч. №Э/486.
4. Физический макет экспериментального устройства . Анализ результатов физических исследований : отчет / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 26.09.2017.– Уч. №11-220-02/1551вн.
5. По результатам пуска 183Ф-10В (калибровочный пуск) : протокол / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 25.09.18.– Уч. №Э/515.
6. Исследования с монитором энерговыделения, облученном в пуске 183Ф-10В в составе ЭУ : протокол / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 15.10.18.– Уч. №13-240-02/1704вн.
7. Программа испытаний / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 02.07.2018.– Уч. №11-220-01/1180вн.
8. Протокол по результатам пуска / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 01.11.2018.– Уч. №Э/606.
9. Исследование возможности проведения на реакторном комплексе ИГР экспериментов по контролируемому перемещению расплава материалов ТВС перспективного быстрого реактора : финальный отчет / ИАЭ НЯЦ РК.– Курчатов, 14.05.1998.– Уч. №240/169вн.

Г Л А В А 2

ИССЛЕДОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ ТВЭЛОВ БЫСТРЫХ РЕАКТОРОВ В ТЯЖЕЛЫХ АВАРИЯХ

*Вурим А.Д., Котов В.М., Пахниц А.В., Иркимбеков Р.А., Мухамедов Н.Е.,
Витюк Г.А., Сураев А.С., Сулейменов Н.А., Жанболатов О.М.,
Кожабеев З.Б., Жунусова А.С., Котляр А.Н., Миллер А.А.,
Гайдайчук В.А., Цхе В.К.*

Введение

В настоящее время проблемам безопасности ядерных реакторов на быстрых нейтронах посвящено большое количество исследований, что делает данное направление актуальным.

Реактор ИГР относится к исследовательским реакторам с тепловым спектром нейтронов, что накладывает определенные ограничения на внутриреакторные испытания топлива быстрых реакторов. В связи с этим были сформулированы предложения по локальному изменению энергетического спектра нейтронов в ЦЭК реактора ИГР путем конверсии части тепловых нейтронов в быстрые, либо путем использования поглотителя тепловых нейтронов.

Работа по данному направлению предполагает разработку и создание ЭУ, содержащего конвертер тепловых нейтронов в быстрые или поглотитель тепловых нейтронов в ЦЭК ИГР (далее ЭУ с КН).

Целью реакторного пуска ЭУ с КН являлось получение экспериментальных данных подтверждающих возможность испытаний твэлов быстрых реакторов на реакторе ИГР в потоке быстрых нейтронов.

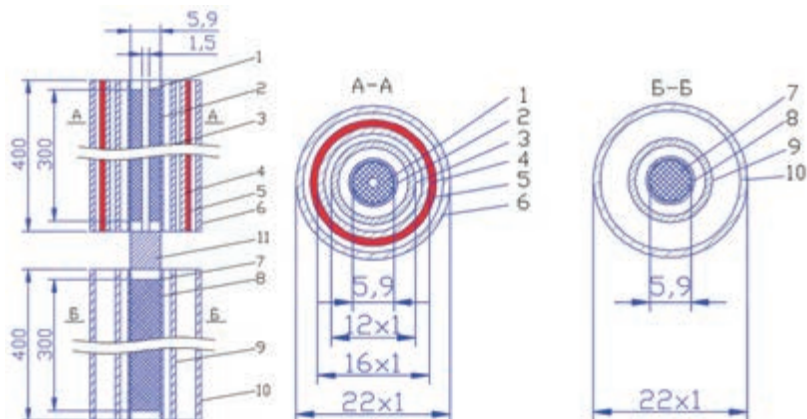
Внутриреакторные испытания предполагают проведение комплекса подготовительных работ, включающих, в том числе, обоснование безопасности реакторных экспериментов в условиях штатных и внештатных сценариев их протекания.

Целью настоящей работы являлось обоснование условий безопасного проведения реакторных испытаний ЭУ с КН, выбор и обоснование организационных и технических мер, обеспечивающих надежную защиту персонала, реактора ИГР и технологических систем реакторного комплекса.

Данные исследования выполнялись по теме «Исследование поведения твэлов быстрых реакторов в тяжелых авариях» в рамках РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов».

2.1 Разработка технического проекта на экспериментальное устройство

Конструкция ЭУ (черт. АК.21373.00.000СБ) разработана в рамках Технического проекта [1]. Общий вид ЭУ показан на рисунке 2.1. Основными элементами конструкции ЭУ с КН являются силовой корпус и внутренние элементы.



- 1 – топливо 17%; 2 – оболочка твэла верхнего; 3 – рубашка охлаждения твэла верхнего; 4 – тепловой экран; 5 – кадмиевый поглотитель; 6 – корпус твэла верхнего; 7 – топливо 0,27%; 8 – оболочка твэла нижнего; 9 – рубашка охлаждения твэла нижнего; 10 – корпус твэла нижнего

Рисунок 2.1. Эскиз конструкции испытательной секции

Силовой корпус

Силовой корпус (рисунок 2.2) состоит из следующих элементов:

- ампула WF, черт. АК.20974.10.000;
- секция испытательная, черт. АК.21373.01.000.

В состав ампулы WF (рисунок 2.3 на стр. 66) входят:

- корпус (поз. 1);
- крышка (поз. 3);
- шпилька М30×2 (10 штук) (поз. 19);
- гайка М30×2 (10 штук) (поз. 20);
- прокладка (поз. 2);
- гермопроходник на пятьдесят контактов (3 штуки) (поз. 14).

Ампула WF относится к оборудованию группы С согласно ПНАЭ Г-7-008-89 [2], класса безопасности 3 согласно ОПБ ИР-94 (ПНАЭ Г-16-34-94 [3]) и 3 категории согласно [4].

Корпус представляет собой сварную конструкцию, состоящую из фланца, цилиндрической обечайки и эллиптического днища. К боковой поверхности фланца приварены две бобышки для крепления грузовых болтов. Для крепления ампулы в реакторе к цилиндрической части фланца приварены два кронштейна, усиленные ребрами жесткости. Детали корпуса выполнены из стали 12Х18Н10Т.

Основные характеристики корпуса:

- длина корпуса – 3940 мм;
- ширина по опорам – 315,2 мм;
- габаритная ширина – 325 мм;
- наружный диаметр обечайки – 219 мм;
- внутренний диаметр обечайки – 199 мм;
- расчетное давление – 7,85 МПа (80 кгс/см²);
- расчетная температура – 623 К (350 °С);
- масса ЭУ – 308 кг;
- внутренний объем – 120 л.

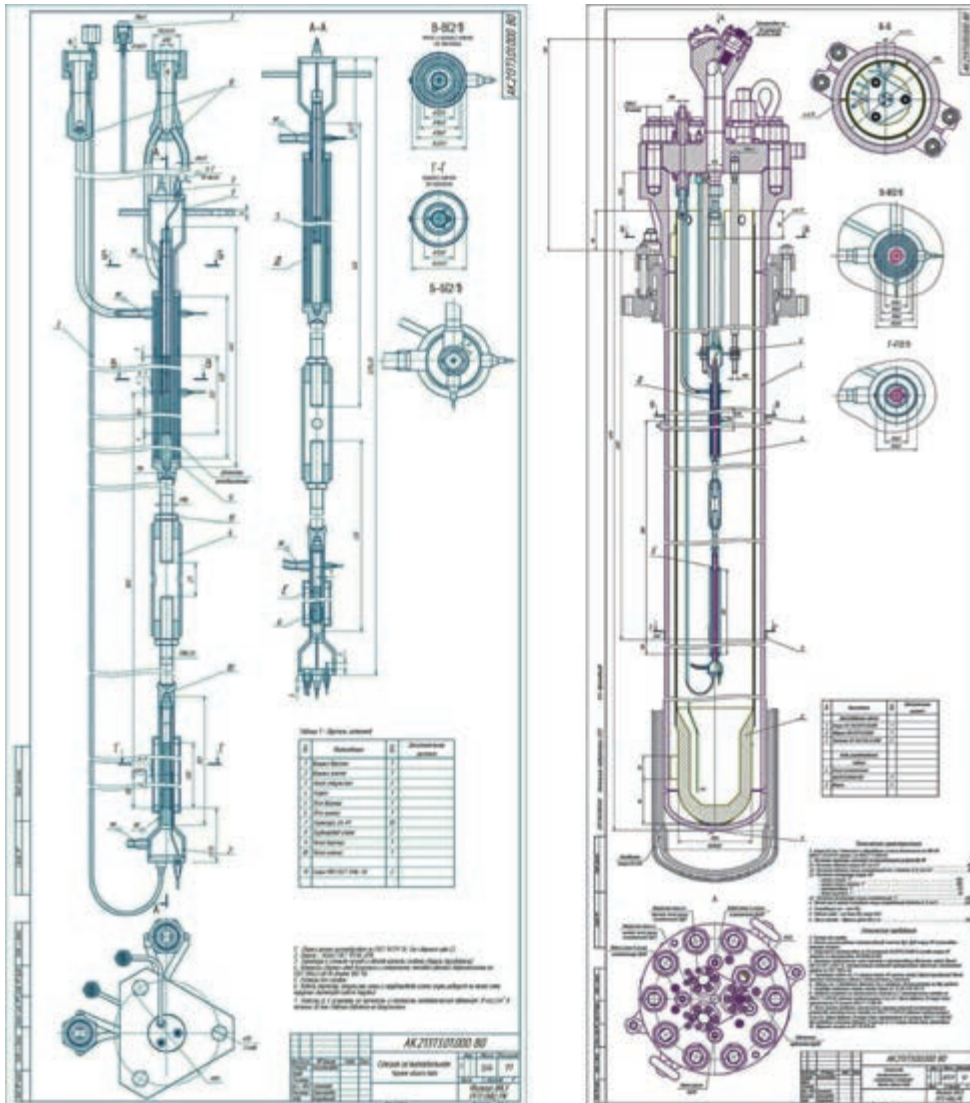
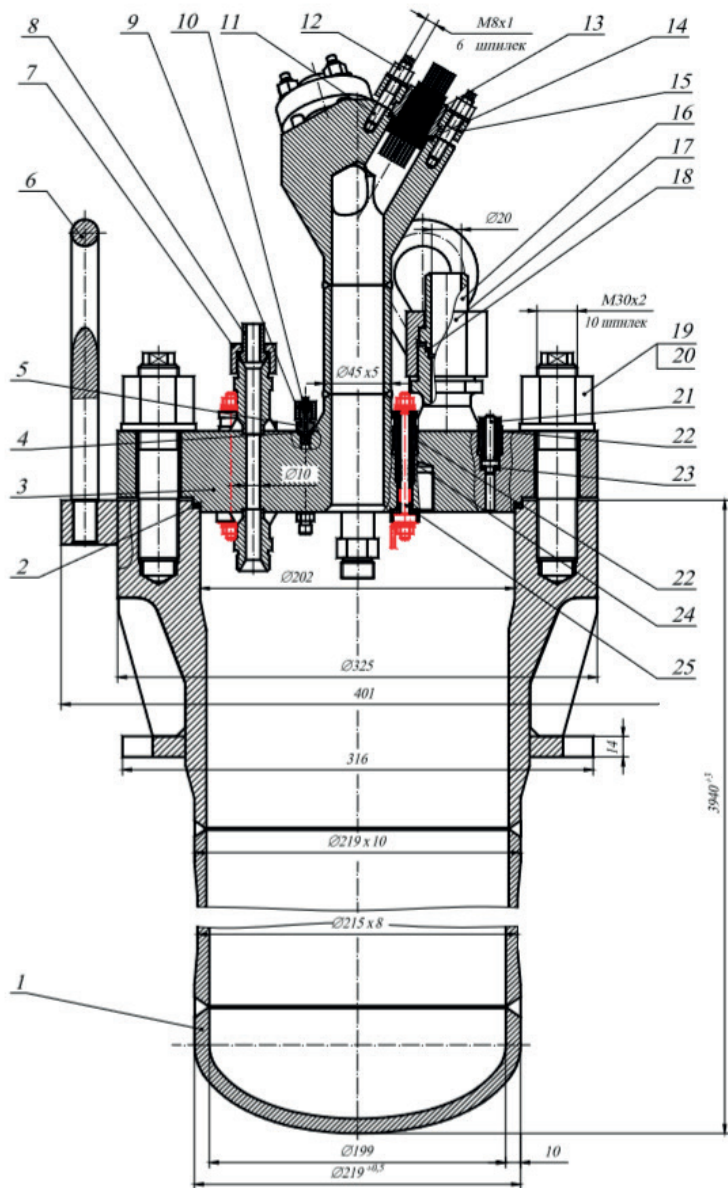


Рисунок 2.2. ЭУ с КН



- 1 – корпус; 2 – прокладка 212×202×2; 3 – крышка; 4 – прокладка 8,9×6,4×1;
 5 – штуцер ввертной; 6 – болт грузовой; 7 – гайка накидная M22×1,5; 8 – ниппель Ду10;
 9 – гайка накидная M8×1; 10 – ниппель Ду2; 11 – шпилька M8×1; 12 – Гайка M8×1;
 13 – гермопроходник; 14 – прокладка 34×28×2; 15 – кольцо нажимное;
 16 – ниппель Ду20; 17 – гайка накидная M39×1,5; 18 – прокладка 28×24×2;
 19 – шпилька M30×2; 20 – гайка M30×2; 21 – гермопроходник; 22 – гайка нажимная;
 23 – прокладка 12×6×2; 24 – комплект уплотнения токоввода; 25 – шпилька токоввода

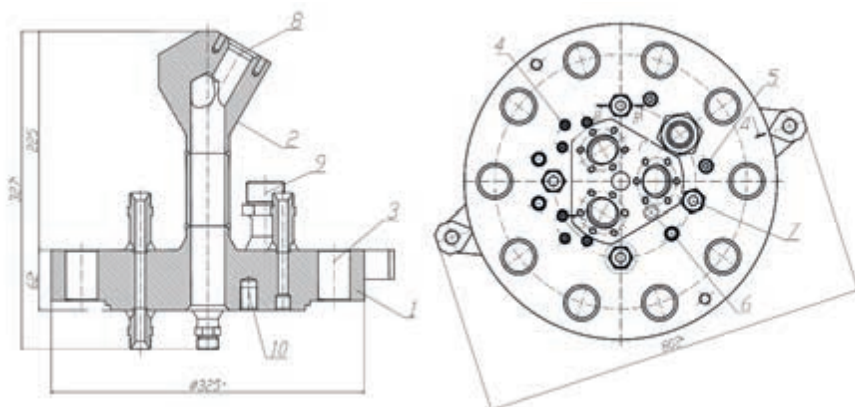
Рисунок 2.3. Ампула WF

Крышка ампулы (рисунок 2.4) плоская и представляет собой диск диаметром 325 мм и толщиной 62 мм. Материал крышки – сталь 12Х18Н10Т.

Сверху на крышке приварены и ввернуты следующие элементы:

- коллектор с гермопроходниками;
- два штуцера Ду10 (вход-выход) подачи (выхода) охлаждающего азота во внутреннюю полость силового корпуса;
- два штуцера Ду 10 (вход-выход) канала охлаждения секции испытательной;
- штуцер Ду20 для установки предохранительного клапана;
- шесть штуцеров Ду2 для подсоединения импульсных линий замера давления;
- четыре токоввода (материал – медь твердая марки М1).

В ЭУ неиспользуемые гермопроходники (2 штуки), ниппели Ду10 (2 штуки) и Ду2 (4 штуки) заменены штатными заглушками.



- 1 – крышка; 2 – коллектор; 3 – отверстия под шпильки М30×2; 4 – токоввод;
5 – гермопроходник КЭДН; 6 – импульсная линия; 7 – штуцер тракта охлаждения;
8 – гермопроходник; 9 – штуцер Ду20 для предохранительного клапана; 10 – отверстия под штанги

Рисунок 2.4. Крышка WF

В крышке (рисунок 2.4) имеется 10 отверстий диаметром 33 мм под шпильки (поз. 3), 4 отверстия для установки токовводов (поз. 4) и 2 отверстия под имитатор КЭДН (поз. 5). К крышке привариваются 6 штуцеров Ду2 для подключения импульсных линий (поз. 6) и 4 штуцера Ду10 (поз. 7) для подключения к трактам охлаждения (азот) испытательной секции и к внутренней полости ампулы. В коллекторе крышки расположено три отверстия (поз. 8) под гермопроходники на 50 контактов для подключения компенсационных проводов термоэлектрических преобразователей.

Прочность гермопроходников обеспечивают металлический корпус и дистанционирующие решетки из стеклотекстолита, залитые эпоксидным компаундом. При этом герметичность обеспечивает эпоксидный компаунд. Температура использования гермопроходников не должна превышать 343 К (70 °С), а избыточное давление 80 кгс/см².

Также на крышке приварен штуцер Ду20 (поз. 9), который необходим для подключения к предохранительному клапану. В нижней части крышки имеются три отверстия с резьбой М18×2 (поз. 10) для установки штанг испытательной секции. Детали крышки выполнены из стали 12Х18Н10Т.

Характеристика крышки WF:

- габаритная высота – 327 мм;
- габаритная ширина – 802 мм;
- расчетное давление – 7,85 МПа (80 кгс/см²);
- расчетная температура – 373 К (100 °С);
- масса – 38 кг.

Для соединения крышки с корпусом ампулы WF применяются шпильки М30×2 в количестве десяти штук, выполненные из стали 12Х18Н10Т, и гайки из стали 40Х. Герметизация ампулы между крышкой WF и корпусом осуществляется паронитовой прокладкой размером 212×202×2 мм, тип уплотнения – «в замок».

Верхняя крышка испытательной секции представляет собой сварную конструкцию и состоит из фланца и обечайки. Фланец выполнен из круга (сталь 12Х18Н10Т) имеет диаметр 30 мм и толщину 5 мм. Для вывода кабелей термоэлектрических преобразователей во фланце имеются 2 штуцера. Обечайка предназначена для соединения фланца крышки с верхним чехлом.

Нижняя крышка конструктивно схожа с верхней крышкой, но укорочена и имеет 4 штуцера под термоэлектрические преобразователи, импульсную линию и трубопровод азота.

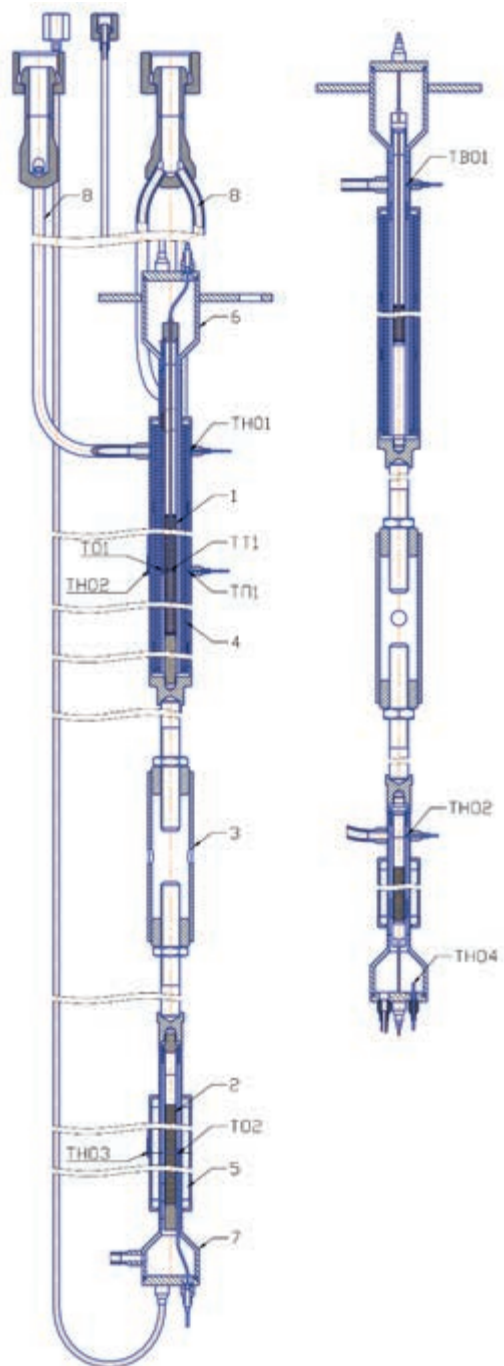
Внутренние элементы

К внутренним элементам ЭУ (рисунок 2.2 на стр. 65) относятся:

- испытательная секция (поз. 4);
- ловушка (поз. 2).

Испытательная секция ЭУ с КН необходима для получения данных о конвертации потока тепловых нейтронов в реакторе, путем сравнения энергосвечения и интегрального потока нейтронов в твэлах с различным обогащением по урану-235. Конструктивно, испытательная секция состоит из двух частей, со своей системой циркуляции теплоносителя для предотвращения расплавления топливных элементов. Сборка испытательной секции производилась согласно рисунку 2.5 и является основным исследуемым элементом конструкции, которая представляет собой сборную конструкцию, состоящую из:

- верхнего твэла с конвертером (поз. 1);
- нижнего твэла без конвертера (поз. 2);
- талрепа (поз. 3), соединяющего два твэла между собой и позволяющего установить требуемое расстояние между ними;
- чехлов верхнего и нижнего твэлов (поз. 4, 5);
- крышек верхнего и нижнего твэлов (поз. 6, 7);
- термопар типа ХА в количестве 10 штук;
- трубопроводов подачи и отвода азота (поз. 8);
- импульсных линий.



1 – верхний твэл; 2 – нижний твэл; 3 – талреп; 4 – верхний чехол; 5 – нижний чехол;
 6 – верхняя крышка; 7 – нижняя крышка; 8 – трубопроводы азота

Рисунок 2.5. Секция испытательная

Оба твэла набираются из топливных таблеток типа БН-350, высота топливного столба в обоих твэлах одинакова и равна 300 мм, таблетки расположены в оболочке, которая представляет собой трубку с размерами 6,9×0,4 мм выполненную из стали Х16Н15МЗБ. С торцов твэл закрывается заглушками. Внутри обоих твэлов установлены активационные детекторы из никелевой фольги в виде диска диаметром 5,9 мм, расположенные в нижней, средней и верхней частях твэла. При этом у каждого твэла есть свои отличительные конструктивные особенности. Так, верхний твэл содержит топливные таблетки массой ~80 г из диоксида урана с обогащением по ^{235}U , равным 17%, конвертер тепловых нейтронов в быстрые (кадмиевый экран). Нижний твэл не экранирован кадмием и набирается из топливных таблеток массой ~ 86 г из диоксида урана с обогащением по ^{235}U равным 0,27%. Подробно параметры твэлов представлены в таблице 2.1.

Таблица 2.1. Параметры твэлов

Параметр	Значение
Топливо	UO_2
Обогащение топлива по ^{235}U , % в верхнем твэле в нижнем твэле	~17 ~0,27
Плотность топлива, г/см ³	10,3 – 10,8
Диаметр, мм топливной таблетки наружный центрального отверстия (для верхнего твэла)	5,9±0,02 1,5±0,1
Высота топливного столба в твэлах, мм	300
Количество топлива, кг в верхнем твэле в нижнем твэле	0,08 0,086
Количество активационных детекторов, шт в верхнем твэле в нижнем твэле	3,0 3,0

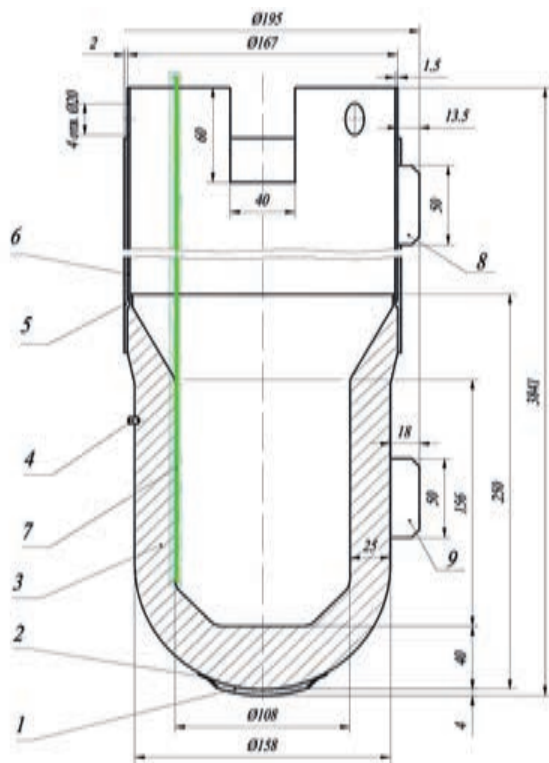
Чехлы предназначены для размещения твэлов и организации тракта их охлаждения.

Конструктивно верхний чехол состоит из наружной (трубка $\varnothing 22 \times 1$ мм, длиной 400 мм) и внутренней (трубка $\varnothing 12 \times 1$ мм, длиной 430 мм) обечаяек, а также теплового экрана (трубка из стали марки 12Х18Н10Т, $\varnothing 16 \times 1$ мм, длиной 400 мм), размещенного между обечайками. На наружной поверхности теплового экрана размещен кадмиевый поглотитель (трубка $\varnothing 18 \times 1 \times 400$ мм), выполняющий роль конвертера нейтронов. Полости между наружной обечайкой и тепловым экраном, внутренней обечайкой и твэлом образуют тракт охлаждения.

Конструкция нижнего чехла аналогична конструкции верхнего чехла, но не содержит в своем составе тепловой экран и кадмиевый поглотитель.

Охлаждение твэлов испытательной секции выполняется азотом, который подается и отводится через индивидуальные для каждого твэла трубопроводы. Трубопровод азота выполнен из трубки диаметром 6×1 мм.

В полости ампулы WF устанавливается ловушка (рисунок 2.6), предназначенная для приема расплава, который может образоваться в случае развития нештатной ситуации, и для предотвращения возможного теплового и контактного воздействия расплавленного топлива на корпус ампулы ЭУ.



1 – проставка асбестовая; 2 – прижим; 3 – стакан; 4, 8, 9 – дистанционатор;
5 – вата графитовая; 6 – чехол; 7 – термопара типа ХА

Рисунок 2.6. Ловушка

В конструкции ЭУ с КН используется ранее разработанная для физического макета ЭУ ПК (АК.21297.00.000) ловушка (АК.21297.02.000). Ловушка состоит из стального чехла (поз. 6) и стакана (поз. 3). Стакан изготовлен из стали 12Х18Н10Т с наружным диаметром 158 мм и высотой 250 мм. Дно стакана – сферическое, имеет толщину 40 мм. Толщина стенки – 25 мм.

Наружный диаметр ловушки с чехлом значительно меньше внутреннего диаметра ампулы WF. Поэтому для точного позиционирования и фиксации ловушки к ней по окружности приварено девять дистанционаторов – шесть на стакане (поз. 4, 9) и чехле (поз. 8).

К торцу стакана приварен чехол (поз. 6) из стали Ст3. Чехол представляет собой обечайку с наружным диаметром 167 мм и толщиной 1,5 мм. Длина чехла – 3591 мм. Сверху в чехле имеются четыре отверстия диаметром 20 мм для захвата при выемке ловушки из корпуса ампулы.

Внутри ловушки размещена одна термopара типа ХА диаметром 1 мм (поз. 7). Для исключения прямого контакта стальной ловушки с корпусом ампулы, к дну стакана при помощи прижимов крепится асбестовая проставка (поз. 1) толщиной 4 мм. Чехол по всей высоте покрывается слоем графитовой ваты (поз. 5) толщиной 2 – 3 мм.

Защитная функция ловушки обеспечивается за счет высокой интегральной теплоемкости (пассивная защита).

Перечень измеряемых параметров

Количество, типы и места установки первичных датчиков измерения параметров (рисунок 2.7) отвечают требованию обеспечения возможности восстановления последовательности событий по результатам измерений и требованиям обеспечения текущего контроля состояния ЭУ в процессе подготовки и проведения эксперимента. Основные характеристики датчиков давления представлены в таблице 2.2.

Таблица 2.2. Характеристики датчиков давления

Условное обозначение по схеме	Расстояние от ЦАЗ, мм	Место установки импульсной линии	Точка отбора давления
ДД1	+186	Верхний твэл	Давление азота на входе в полость наружной обечайки
ДД2	-164	Нижний твэл	Давление азота на входе в полость внутренней обечайки

Количество, характеристики и места установки первичных датчиков измерения температуры ампулы ЭУ определяются соображениями безопасного проведения эксперимента, поскольку максимально допустимая температура ампулы составляет 350 °С. Параметры датчиков температуры в ампуле ЭУ представлены в таблице 2.3.

Таблица 2.3. Параметры датчиков температуры ампулы ЭУ

Условное обозначение	Расстояние от ЦАЗ, мм	Тип первичного преобразователя	Способ крепления горячего спая	Измеряемая среда	Максимальное значение настройки вторичного преобразователя, °С
ТСК1	+800	ХК	бандаж	сталь	800
ТСК2	+800				
ТСК3	0				
ТСК4	0				
ТСК5	-1283				

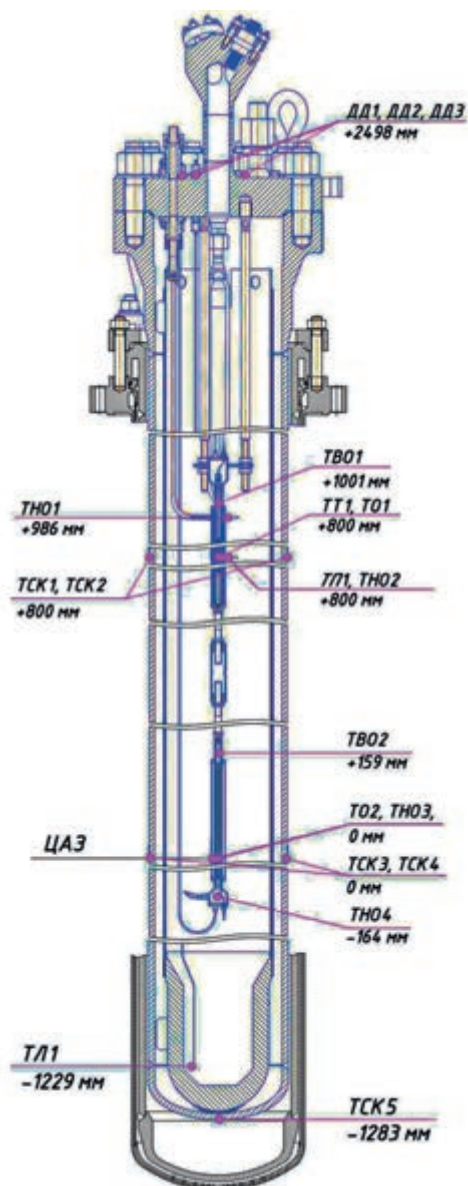


Рисунок 2.7. Схема расположения точек контроля параметров в ЭУ с КН

Система регистрации и обработки параметров

Система регистрации и обработки параметров предназначена для записи и обработки сигналов первичных преобразователей (датчиков) и формирования сигналов (команд) для текущего управления технологическими системами и системами защиты. Основные характеристики системы регистрации и обработки параметров приведены в таблице 2.4 (см.стр. 74).

Таблица 2.4. Характеристики системы регистрации и обработки параметров

Наименование параметра	Значение
1 Количество каналов регистрации	68
2 Характеристики измерительных усилителей:	
2.1 Основная погрешность, %, не более	0,15
2.2 Время установления сигнала, с, не более	0,001
2.3 Время наработки на отказ, ч, не менее	15000
3 Характеристики цифровых регистраторов:	
3.1 Время преобразования ADC регистратора, мкс	1
3.2 Период опроса всех каналов регистратора, мкс	10 – 100000
3.3 Основная погрешность, %, не более	0,1
3.4 Время наработки на отказ, ч, не менее	12000
4 Характеристики устройства аналоговой регистрации и визуализации:	
4.1 Количество каналов регистрации	24
4.2 Частотный диапазон регистратора, кГц	0 – 1
4.3 Основная погрешность канала регистрации, %, не более	0,5
4.4 Время установления сигнала канала регистрации, с, не более	1
4.5 Количество каналов аналоговой визуализации	16
4.6 Основная погрешность показаний аналоговой визуализации, %, не более	1
4.7 Время установления сигнала для каналов аналоговой визуализации, с, не более	2
4.8 Время наработки на отказ устройства, ч, не менее	2000
5 Характеристики устройства допускового контроля и формирования сигналов аварийной защиты:	
5.1 Количество каналов	48
5.2 Время срабатывания, мс, не более	50
5.3 Основная погрешность срабатывания, %, не более	0,2
5.4 Время наработки на отказ, ч, не менее	10000

Тракт охлаждения испытательной секции

В состав пневмогидравлических систем, важных с точки зрения обеспечения безопасности испытаний ЭУ с КН, входят:

- система подачи азота на охлаждение ИС;
- выхлопная система КИР ИГР.

Источником азота в системе охлаждения узлов ЭУ с КН являются баллоны здания №10 КИР ИГР. Запас газообразного азота в баллонах составляет 1280 кг при температуре от 273 К до 293 К и при давлении 32 МПа.

Сброс азота из трактов охлаждения ЭУ с КН осуществляется в выхлопную систему.

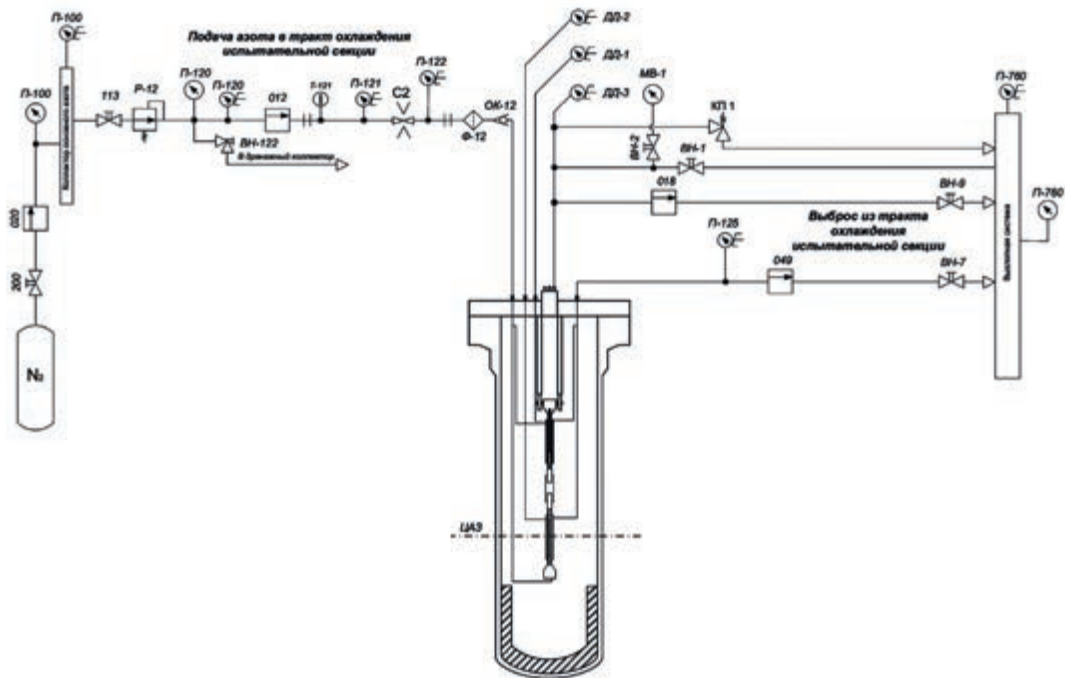
Подача азота в тракт охлаждения ИС осуществляется по трубопроводу, снабженному запорно-регулирующей арматурой и расходозадающим соплом, и начинается непосредственно перед началом исследовательского пуска. Подача азота в тракт охлаждения ИС после завершения работы реактора (на режиме расхолаживания) осуществляется до момента достижения элементами ИС температуры 373 К. Система обеспечивает подачу азота (рисунок 2.8 на стр. 76) в тракт охлаждения ИС и сброс азота в выхлопную систему с расходом до 0,05 кг/с и давлением на входе в тракт охлаждения до 2,0 МПа.

Основные параметры тракта подачи азота на охлаждение испытательной секции и выброса азота в выхлопную систему приведены в таблице 2.5, а результаты расчетов приведены в [5].

Таблица 2.5. Параметры тракта подачи азота на охлаждение ИС и выброса азота в выхлопную систему

Наименование	Характеристика или значение
1 Температура азота на входе в тракт охлаждения ИС, К	273 – 293
2 Температура азота на выходе из тракта охлаждения ИС, К	605 – 699
3 Трубопровод подачи азота:	
3.1 Длина (до соединения металлорукава с входным штуцером тракта охлаждения ИС), м	29,5
3.2 Условный гидравлический диаметр, мм	20
3.3 Количество гибов	7 (гиб на 90° с радиусомгиба 150 мм)
3.4 Перечень арматуры (последовательно от коллектора)	вентиль типа Т124; редуктор расходный типа Т616; клапан отсечной типа Т230 (Ду32); клапан обратный типа Т314(Ду10)
3.5 Устройство задания расхода	сопло, установленное за отсечным клапаном в составе расходозадающего участка, состыкованного с трубопроводом подачи азота фланцевыми соединениями
3.6 Точки контроля давления	за расходным редуктором Т616; на входе и выходе расходозадающего сопла
3.7 Точки контроля температуры	на входе расходозадающего сопла
4 Трубопровод выброса азота:	
4.1 Длина (от устройства до выхлопной системы), м	3,5

Наименование	Характеристика или значение
4.2 Условный гидравлический диаметр, мм	20
4.3 Количество гибов	2 (гиб на 90° с радиусомгиба 150 мм)
4.4 Перечень арматуры (последовательно от устройства до выхлопной системы)	ловушка для осаждения радиоактивных аэрозолей (клапан отсечной типа Т230 (Ду32) вентиль типа Ш52)
4.5 Точки контроля давления	за ловушкой аэрозолей поз. ЛА-2
4.6 Точки контроля температуры	на выходе из тракта



ВН-1...ВН-5, ВН-8, ВН-9 – вентиль Т100; ВН-6, ВН-7 – вентиль Ш52 (Ду20); ВН-111, ВН-122, ВН-211 – вентиль У1-01-00 (Ду4); ВН-224 – вентиль У1-03-00 (Ду10);
 108, 113 – вентиль Т124 (Ду32); 200 – вентиль Т134 (Ду50); П-120...П-125 – датчик давления ДДМ; РП-130...РП-133 – датчик давления ДДМ; П-100 – датчик давления ДТ400;
 О20 – клапан отсечной Т240 (Ду50); О12, О110 – клапан отсечной Т230 (Ду32);
 КО-1...КО-5 – клапан отсечной У2-01-00; КП1, КП2 – клапан предохранительный Т425 (Ду32); Ф1, Ф2, Ф3, Ф12, Ф13 – фильтр ВХ 7826 (Ду10); ЛА1...ЛА2 – ловушка аэрозолей АК.20915.00.000; ОК12, ОК13 – клапан обратный Т314 (Ду10); Р- 12, РП-13 – редуктор Т616, Р-21 – редуктор Т610

Рисунок 2.8. Принципиальная схема систем подачи газов в ЭУ

2.2 Разработка программы экспериментов по исследованию характеристик твэла быстрого реактора

Мощность энерговыделения реализуемого в ЭУ является основным управляемым параметром в эксперименте. Диаграмма изменения мощности энерговыделения в топливе ЭУ (рисунок 2.9) выбрана такой, чтобы температура элементов твэлов не превысила температуры их плавления, а интегральное энерговыделение в реакторе в регулируемом режиме достигло максимального значения в 5,2 ГДж.

Исследовательский пуск проводится по диаграмме изменения мощности ИГР, обеспечивающей интегральное энерговыделение в топливе $\sim 0,95$ кДж/г UO_2 .

Эксперимент заканчивается процедурой расхолаживания, основной целью которой является обеспечение температуры корпуса ампулы и давления внутри полости внутреннего корпуса в диапазоне разрешенных значений.

После завершения эксперимента демонтируются элементы, соединяющие ЭУ с системами КИР ИГР. ЭУ консервируется. В процессе консервации на штуцеры трактов охлаждения устанавливаются технологические заглушки и принимаются меры для обеспечения герметичности внутренней полости силового корпуса, которая должна быть заполнена аргоном.

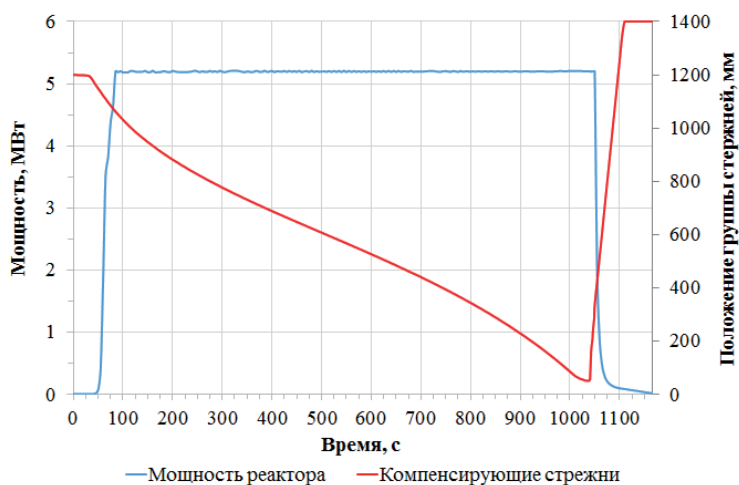


Рисунок 2.9. Диаграмма изменения мощности ИГР

После консервации ЭУ помещается в хранилище реактора ИГР на временное хранение вплоть до начала послереакторных исследований.

2.3 Принципы обеспечения безопасности в эксперименте

Основным условием безопасного проведения реакторного испытания является обеспечение целостности силового корпуса в условиях термического и механического нагружения. Как защитный барьер, ампула и крышка WF должны обеспечивать защиту неподвижной ампулы НА-228 и, следовательно, реактора ИГР от любого разрушающего

воздействия со стороны ЭУ, а также обеспечивать локализацию радиоактивных и ядерных материалов внутри ЭУ при проведении эксперимента. В этой связи, обоснование условий безопасного проведения эксперимента – это, в первую очередь, подтверждение того, что регламентируемые теплофизические параметры – температура ампулы WF и давление в ее полости – не выйдут за границы области их проектных значений на всех режимах эксплуатации, включая режимы с возможным отклонением условий эксплуатации от нормальных. Под режимом нормальной эксплуатации понимается реализация планируемой последовательности следующих событий:

- реализация требуемой диаграммы мощности реактора;
- разогрев топливных таблеток за счет внутреннего энерговыделения;
- прекращение ядерного нагрева твэла;
- реализация процесса расхолаживания ЭУ до приведения его в безопасное состояние.

В процессе анализа состояния ЭУ при проведении эксперимента в нормальном режиме эксплуатации должна быть оценена величина возможных случайных отклонений. Отклонения от режима нормальной эксплуатации могут реализоваться в случае возникновения отказов элементов, узлов и систем ЭУ с КН, пневмогидравлических систем реактора ИГР, ошибок в действиях персонала.

К отказам оборудования, которые могут реализоваться в ходе проведения эксперимента, следует отнести:

- отказы в системе охлаждения испытательной секции во время реализации диаграммы мощности реактора;
- реализация максимальной вспышки мощности в реакторе с последующим плавлением топлива и элементов испытательной секции и падением образовавшегося расплава в ловушку.

На этапе реализации диаграммы изменения мощности останов реактора при отказе системы охлаждения приведет к невыполнению программы эксперимента. Поэтому отказы системы охлаждения изначально не должны влиять на работоспособность основного защитного барьера – силового корпуса ЭУ, а эксперимент не должен быть остановлен при возникновении такого рода отказов. Это означает, что совокупность защитных свойств элементов и узлов ЭУ должна обеспечивать сохранение работоспособности силового корпуса ЭУ при отсутствии принудительного охлаждения, и все обосновывающие эту работоспособность расчеты должны быть выполнены исходя из этого условия.

При проведении эксперимента определяющими параметрами работоспособности ЭУ являются температура элементов конструкции силового корпуса и крышки и давление среды в полостях и трактах устройства.

Для предупреждения ошибок персонала должны быть своевременно выполнены:

- подготовка, стажировка, сдача экзаменов квалификационной комиссии на допуск к самостоятельной работе персонала, задействованного в работе;
- инструктаж персонала по технике безопасности.

Анализ, выполненный ниже, направлен, в первую очередь, на определение потенциальной возможности превышения проектных значений температуры силового

корпуса и давления в полостях и трактах ЭУ. Исходя из этого, параметрами, важными с позиций обоснования безопасности в процессе реализации внутреннего энерговыделения в твэлах и расхолаживания (в условиях отсутствия принудительного охлаждения ЭУ) являются:

- распределение температуры в конструктивных элементах ИС во время реализации запланированной диаграммы мощности реактора;
- распределение температуры в ловушке ЭУ и корпусе ампулы WF, обусловленное взаимодействием расплава топлива и элементов ИС во время реализации максимальной вспышки мощности в реакторе;
- давление в тракте охлаждения испытательной секции и в полости ампулы.

2.4 Нейтронно-физические и теплофизические параметры ЭУ при проведении эксперимента

Определение нейтронно-физических параметров ЭУ

Исходные данные для проведения нейтронно-физического расчета

Управление реактором при проведении эксперимента основано на знании зависимости мощности энерговыделения в исследуемом топливе и в реакторе. Для определения энергетических параметров топлива ЭУ с учетом нагрева графитовой кладки реактора ИГР, был выполнен ряд нейтронно-физических расчетов с помощью программы MCNP5 с библиотекой ENDF/B-VI [6].

Основная цель нейтронно-физических расчетов – определение отношения удельной мощности устройства к мощности реактора. Для достижения этой цели использована диаграмма изменения мощности реактора в виде регулируемого импульса. При этом интегральное энерговыделение в реакторе ИГР составляет 5,2 ГДж.

При проведении расчетов использовалась модель реактора ИГР [7], детально описывающая реальную конструкцию, и учитывающая неравномерность распределения концентрации урана в объеме активной зоны. В ЦЭК ИГР помещена испытательная секция ЭУ с КН (рисунок 2.10 на стр. 80), чехол с ловушкой расплава и защитная ампула WF. Моделирование ЭУ осуществлялось с соблюдением основных размерно-материальных характеристик. Объединенная расчетная нейтронно-физическая модель ЭУ с КН и ИГР, описывающая конструкцию и последовательность планируемых событий в эксперименте применяется далее для проведения расчетов.

Все вычисления выполнялись для холодного (температура графитовой кладки реактора 294 К) и горячих состояний реактора (400-1200 К) с предположением, что разогрев графитовой кладки и положение стержней регулирования реактора влияет на распределение энерговыделения в объеме испытываемого ЭУ. Разогрев графитовой кладки может изменить отношение энерговыделения в топливе и в реакторе в пределах 10% при реализации полного интеграла энерговыделения [8]. Разогрев топлива и конструкционных материалов ЭУ (с сохранением исходной конфигурации) может изменить значение отношения энерговыделения в топливе и в реакторе в пределах 1% [9,10].

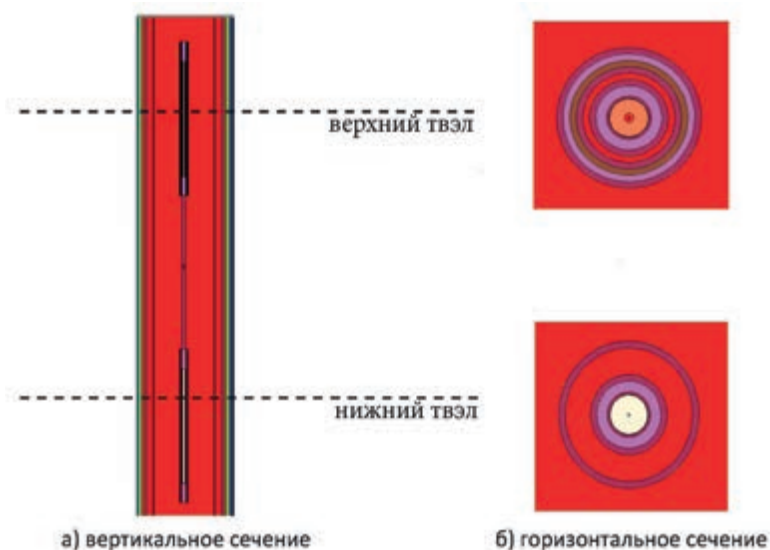
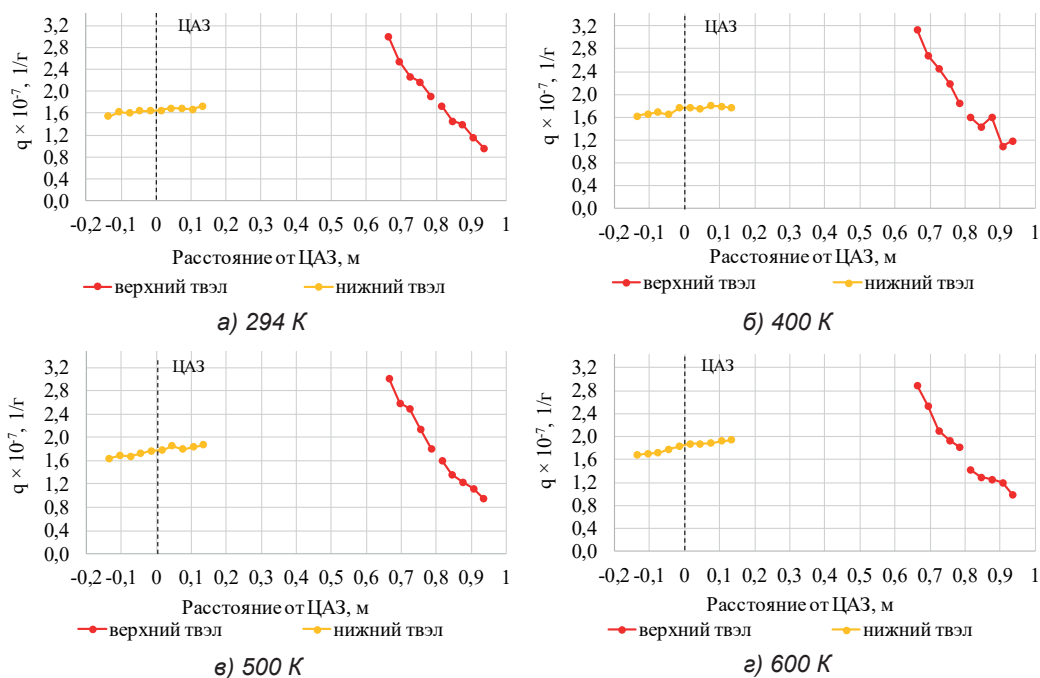


Рисунок 2.10. Объединенная модель ИГР и ЭУ

Результаты нейтронно-физического расчета

В ходе нейтронно-физического расчета определено отношение удельного энерговыделения в топливе к энерговыделению в реакторе (q) при различной температуре АЗ ИГР (рисунок 2.11).



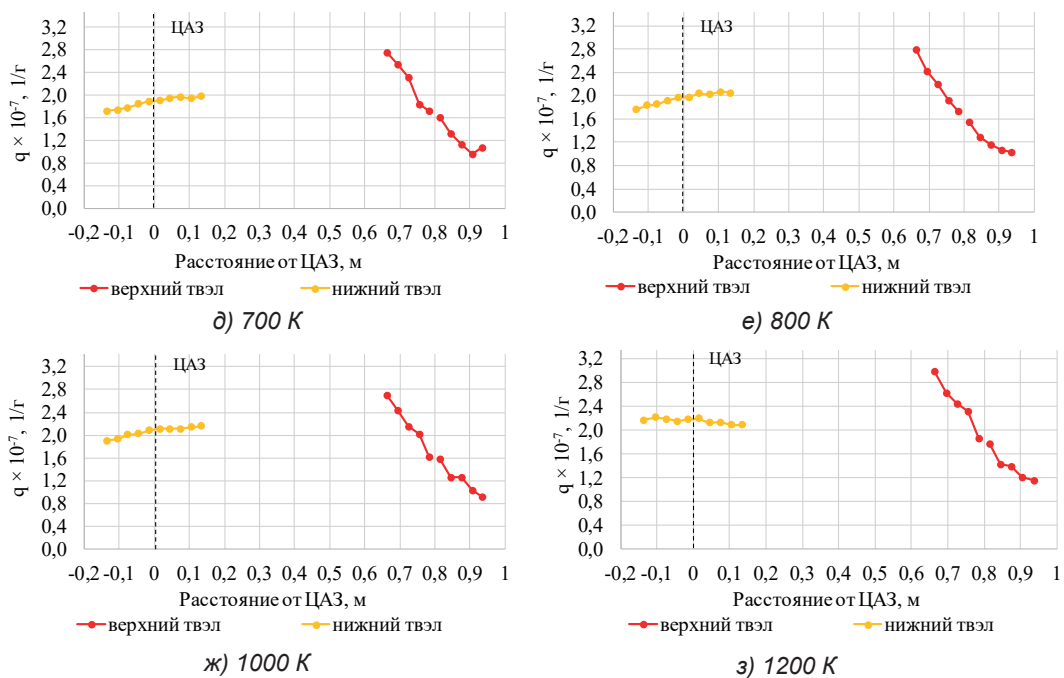


Рисунок 2.11. Распределение относительного значения удельной мощности по высоте твэлов при различной температуре АЗ ИГР

В таблицах 2.6, 2.7 представлено распределение мощности энерговыделения по высоте топливного столба верхнего и нижнего твэлов во время эксперимента при мощности реактора 5,24 МВт. В таблице 2.8 представлен физический вес ЭУ (в единицах реактивности, вносимой в реактор) при различных значениях температуры АЗ реактора.

Таблица 2.6. Распределение мощности энерговыделения по высоте топливного столба верхнего твэла

Температура АЗ, К	294	400	500	600	700	800	1000	1200
	Мощность энерговыделения при температуре АЗ, Вт							
Высота, мм								
1,5	12,6	13,1	12,7	12,2	11,6	9,2	9,7	9,8
4,5	10,7	11,2	10,8	10,7	10,6	9,3	9,6	10
7,5	9,5	10,3	10,5	8,8	9,7	9,1	9,5	9,9
10,5	9,1	9,2	9	8,1	7,7	9,2	9,5	9,7
13,5	8	7,8	7,6	7,7	7,2	8,9	9,5	9,8
16,5	7,2	6,8	6,7	6	6,7	8,8	9,4	9,9
19,5	6,1	6	5,7	5,4	5,6	8,6	9,1	9,6
22,5	5,9	6,7	5,2	5,2	4,8	8,3	9	9,6
25,5	4,9	4,5	4,7	5	4	8,3	8,7	9,4
28,5	4	5	4	4,2	4,5	7,9	8,6	9,4
Общая мощность, Вт	78	80,6	76,9	73,3	72,4	87,7	92,7	97

Таблица 2.7. Распределение мощности энерговыделения по высоте топливного столба нижнего твэла

Температура АЗ, К Высота, мм	294	400	500	600	700	800	1000	1200
	Мощность энерговыделения при температуре АЗ, Вт							
1,5	7,8	7,9	8,4	8,8	8,9	11,7	11,3	12,5
4,5	7,6	8,1	8,3	8,7	8,7	10,1	10,2	11
7,5	7,6	8,1	8,1	8,5	8,9	9,3	9	10,2
10,5	7,6	7,8	8,3	8,4	8,8	8	8,5	9,7
13,5	7,5	8	8	8,4	8,6	7,3	6,8	7,8
16,5	7,4	7,9	8	8,2	8,5	6,5	6,6	7,4
19,5	7,4	7,4	7,8	8	8,3	5,4	5,3	6
22,5	7,2	7,6	7,6	7,7	8	4,8	5,3	5,9
25,5	7,3	7,5	7,6	7,7	7,8	4,5	4,4	5,1
28,5	7	7,3	7,4	7,6	7,7	4,3	3,8	4,8
Общая мощность, Вт	74,3	77,6	79,4	82	84,3	71,9	71,2	80,5

Таблица 2.8. Физический вес ЭУ с КН при различных температурах активной зоны

Температура реактора, К	294	400	500	600	700	800	1000	1200
Физический вес, β	-7,75	-7,87	-8,16	-8,07	-8,14	-8,23	-8,55	-8,57

Тепловое состояние ЭУ при различной температуре АЗ ИГР при реализации диаграммы эксперимента

Условия проведения расчета

Так как температура АЗ реактора повышается с ростом интегрального энерговыделения, то для проведения расчета теплового состояния ЭУ в соответствии с диаграммой в адиабатическом приближении была рассчитана зависимость изменения температуры АЗ от энерговыделения в реакторе (рисунок 2.12). По результатам расчета, при энерговыделении в реакторе 5,2 ГДж, активная зона реактора будет разогрета до температуры 1293 К [6].

Оценка теплового состояния ЭУ с КН при реализации диаграммы эксперимента осуществлялась с помощью двумерной расчетной модели (рисунок 2.13а), разработанной с использованием встроенного в программный комплекс ANSYS модуля Design Modeler. Сетка расчетной модели была построена в программном пакете GAMBIT [11].

В целях оптимизации расчета и снижения вычислительной нагрузки верхний и нижний твэлы описаны отдельными моделями (рисунок 2.13б, в), и тепловое состояние каждого твэла оценивалось в рамках отдельного расчета. Модели твэлов описывают верхний и нижний твэлы, талреп, верхний и нижний чехлы, включающие в себя обечайки, тепловой экран и кадмиевый поглотитель.

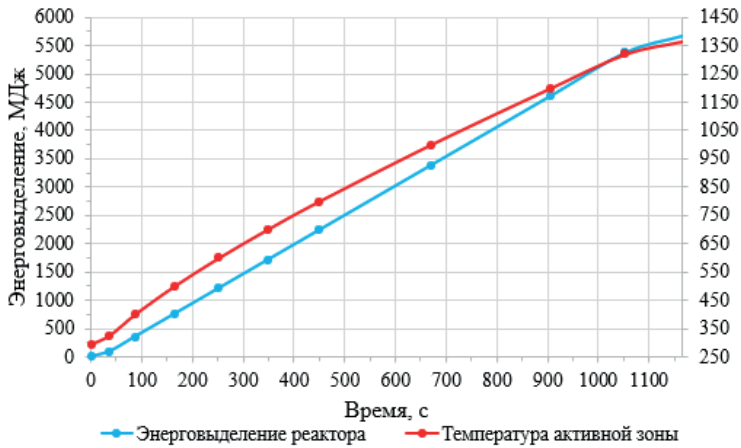
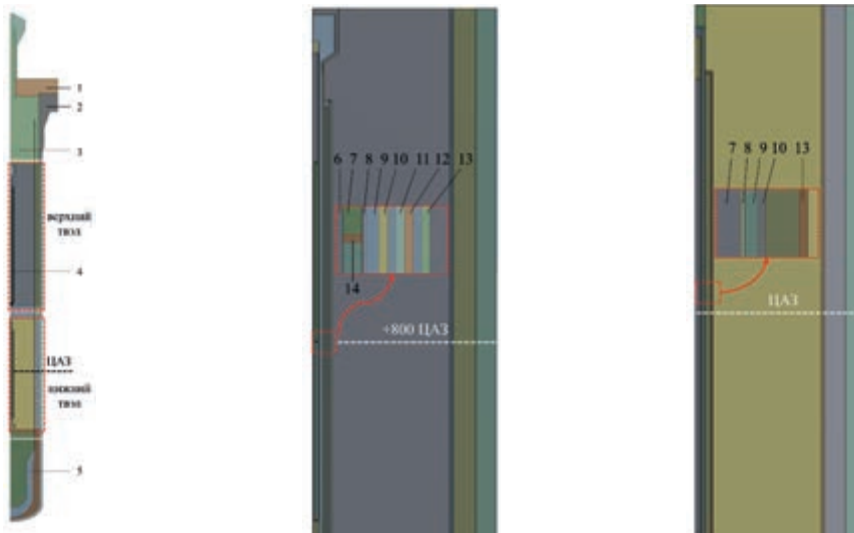


Рисунок 2.12. Зависимость температуры АЗ от энерговыведения



а) общий вид модели б) модель с верхним твэлом в) модель с нижним твэлом

1 – крышка ампулы; 2 – корпус ампулы; 3 – полость ампулы; 4 – испытательная секция; 5 – стакан ловушки; 6 – зазор; 7 – топливо; 8 – оболочка; 9 – азот; 10 – обечайка внутренняя; 11 – тепловой экран; 12 – кадмиевый поглотитель; 13 – обечайка наружная

Рисунок 2.13. Расчетная модель

Расчет выполнен для диаграммы (рисунок 2.9 на стр. 77) при мощности реактора 5,24 МВт.

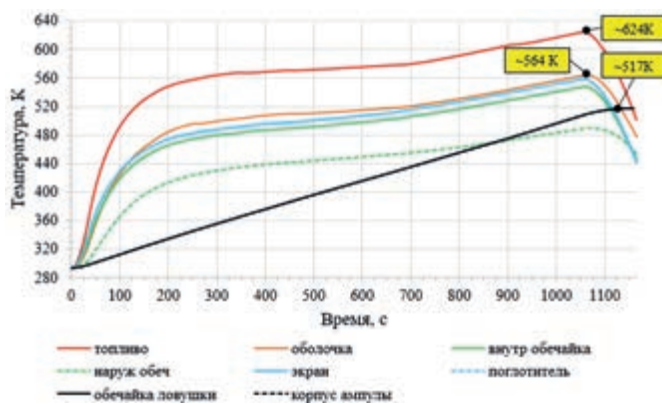
Расчеты проведены при следующих условиях:

- учтен радиационный разогрев конструкционных материалов за счет мгновенного и запаздывающего гамма-излучения;

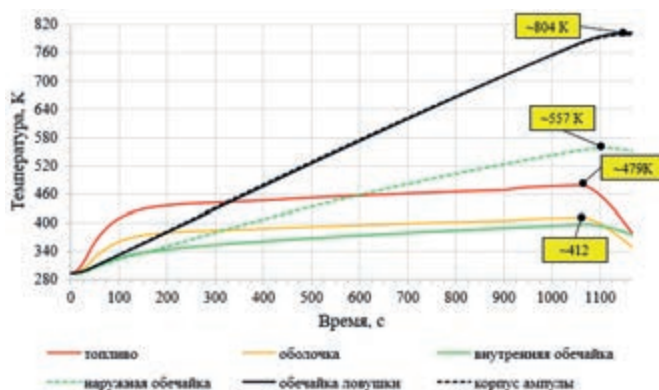
- учтена неравномерность энерговыделения по высоте АЗ ИГР как в топливе, так и в конструкционных элементах;
- учтено изменение отношения мощности устройства к мощности реактора, связанное с изменением температуры АЗ ИГР;
- начальная температура всех элементов в модели составляет 293 К;
- на внешней поверхности испытательной секции заданы условия конвективного теплообмена с окружающей средой при ее температуре 293 К и с коэффициентом теплоотдачи $5 \text{ Вт}/(\text{м}^2 \times \text{К})$;
- теплообмен между элементами осуществляется за счет теплопроводности и конвекции;
- расход охлаждающего азота составляет 2 г/с для каждого твэла;
- охлаждение корпуса ампулы отсутствует.

Результаты расчета

По результатам расчета получены максимальные значения температуры элементов ЭУ. Для верхнего и нижнего твэлов результаты расчета приведены на рисунке 2.14.



а) верхний твэл

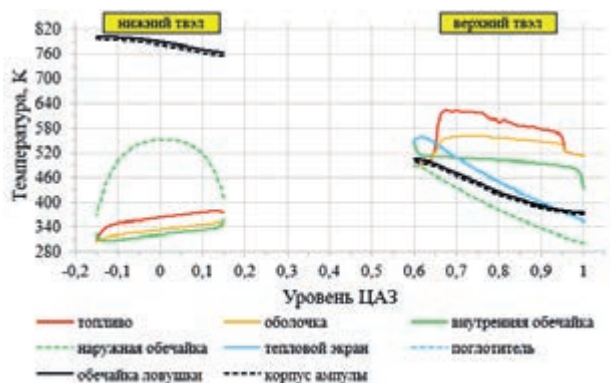


б) нижний твэл

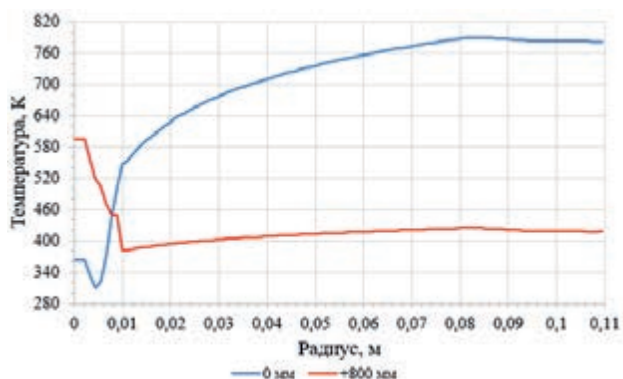
Рисунок 2.14. Максимальные значения температуры в модели с верхним и нижнем твэлом

При энерговыделении в реакторе 5,2 ГДж, на уровне «+800 мм» от ЦАЗ (центр топливного столба верхнего ТВЭЛ по высоте), температура обечайки ловушки и корпуса ампулы находится в допустимом пределе, а на уровне «0 мм» (центр топливного столба нижнего ТВЭЛ по высоте) от ЦАЗ достигает ~804 К и превышает допустимое значение, равное 623 К. Этот порог достигается при энерговыделении в реакторе 3,57 ГДж на 705 с от начала диаграммы эксперимента. В этот момент времени реактор должен быть остановлен и эксперимент должен быть прекращен.

Распределение температуры по высоте на 1055 с приведено на рисунке 2.15а. Радиальное распределение температуры на уровнях «0 мм» от ЦАЗ и «+800 мм» от ЦАЗ показано на рисунке 2.15б.



а) по высоте



б) в середине

Рисунок 2.15. Распределение температуры модели по высоте и радиальное распределение температуры в середине на 1055 с от начала

По результатам расчета теплового состояния ЭУ с КН при различной температуре АЗ ИГР с учетом радиационного разогрева конструкционных и защитных элементов можно сделать следующие выводы:

- максимальная температура топлива составляет 624 К и 479 К в верхнем и нижнем ТВЭлах соответственно;

- максимально допустимое значение температуры обечайки ловушки и корпуса ампулы 623 К достигается на 705 с от начала диаграммы эксперимента в расчете с учетом мгновенного и запаздывающего гамма-излучения и при энерговыделении в реакторе 3,57 ГДж. В этот момент времени эксперимент должен быть прекращен.

Расчет теплового состояния ЭУ в случае неконтролируемого увеличения энерговыделения в твэлах.

Условия расчета

Неконтролируемое увеличение энерговыделения в твэлах может реализоваться в результате развития аварийной ситуации, вызванной самоходом органов СУЗ или ошибкой управления уровнем мощности реактора. В результате самохода компенсирующих стержней при вводе в реактор положительной реактивности более $1,0 \beta_{эф}$ реализуется нейтронная вспышка.

Анализ состояния ЭУ с КН в случае незапланированного энерговыделения в реакторе выполнен при условии отказа системы охлаждения испытательной секции. Изменение мощности реактора в нейтронной вспышке описывалось импульсом треугольной формы с максимальной мощностью 3 ГВт и энерговыделением 1,5 ГДж (рисунок 2.16). Так как с ростом температуры АЗ реактора ИГР повышается мощность твэлов, то выбрано такое отношение энерговыделения в устройстве к энерговыделению в реакторе, которое соответствует температуре АЗ 1200 К (консервативная оценка).

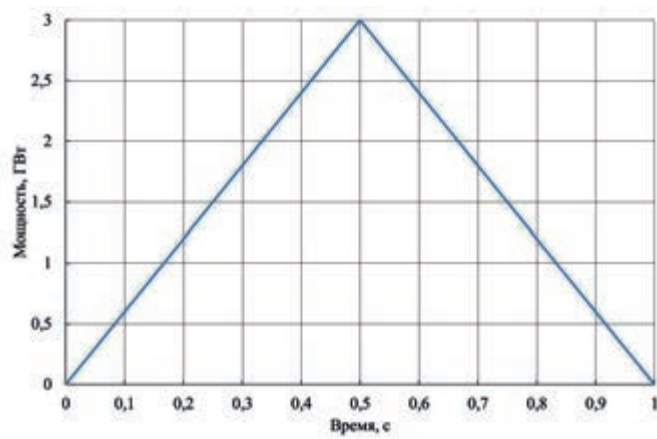


Рисунок 2.16. Условная диаграмма мощности реактора в случае нештатной ситуации

Расчет теплового состояния ЭУ с КН при реализации нейтронной вспышки проведен при следующих условиях:

- теплообмен между конструктивными элементами осуществляется за счет теплопроводности и конвективной теплоотдачи;
- радиационный разогрев материалов не учитывался из-за малой длительности нейтронной вспышки;

- начальная температура всех элементов конструкции ЭУ составляет 293 К;
- на внешней поверхности испытательной секции заданы условия конвективного теплообмена с окружающей средой при ее температуре 293 К и с коэффициентом теплоотдачи 5 Вт/(м²×К);
- циркуляция азота в тракте охлаждения отсутствует.

Результаты расчета

На рисунке 2.17 показано изменение температуры элементов испытательной секции в ходе нейтронной вспышки длительностью 1 с. Температура топлива верхнего твэла достигает 1735 К и не превышает температуры плавления (~2920 К).

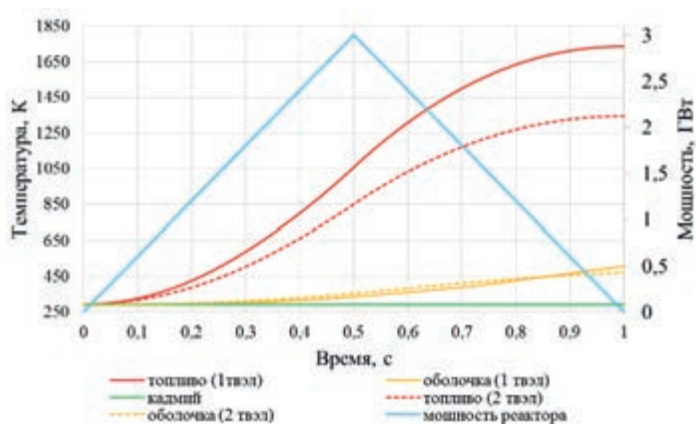


Рисунок 2.17. Изменение температуры элементов испытательной секции

Максимальная температура 1735 К наблюдается в нижней части топливного сердечника верхнего твэла (рисунок 2.18). Температура на наружной поверхности топлива, находящейся в непосредственной близости к оболочке, достигает 1460 К, следовательно, имеется запас до температуры плавления оболочки (1700 К).

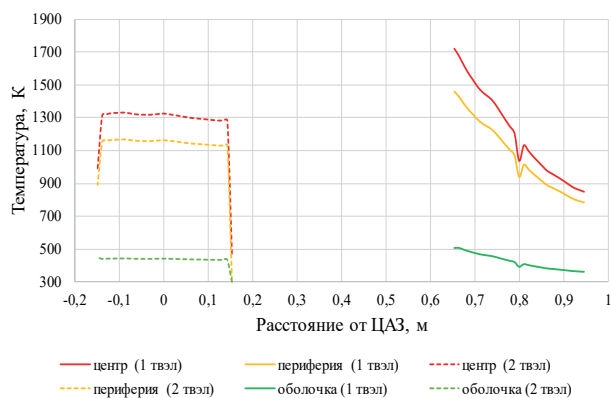
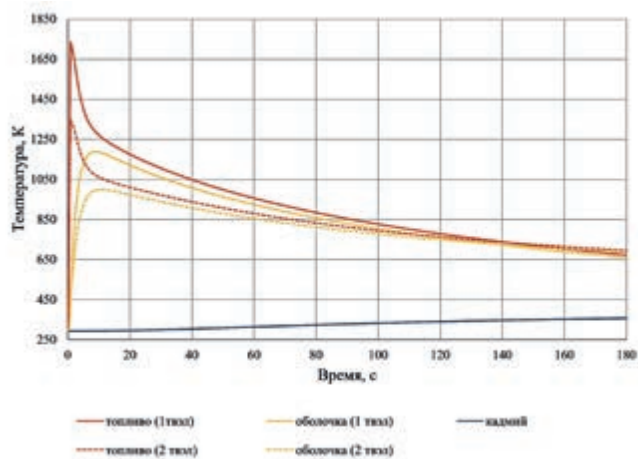
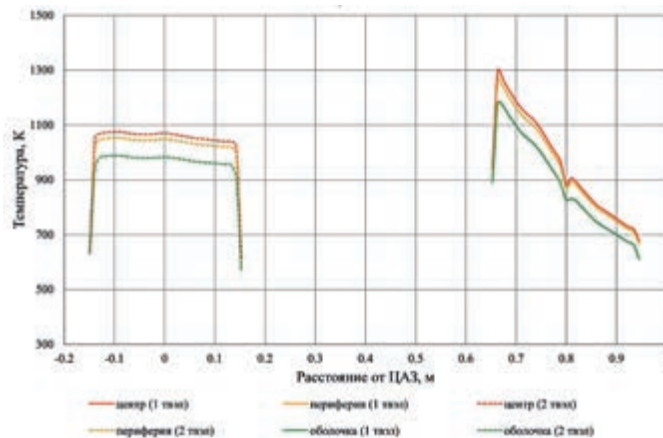


Рисунок 2.18. Аксиальное распределение температуры топлива и оболочки твэлов

Температура оболочки верхнего твэла достигает максимума на 8 с и составляет для верхнего твэла 1182 К, для нижнего – 989 К (рисунок 2.19а). Аксиальное распределение температуры топлива и внутренней поверхности оболочки твэлов в этот момент времени показано на рисунке 2.19б.



а) изменение температуры элементов испытательной секции в промежутке времени от 0 до 180 с



б) аксиальное распределение температуры топлива и оболочки твэлов на 8 с

Рисунок 2.19. Температурное поле в испытательной секции

По результатам расчета теплового состояния ЭУ с КН в случае незапланированного энерговыделения, возникшего в результате самохода органов СУЗ, следует:

- максимальная температура топлива верхнего твэла достигает 1735 К, нижнего – 1330 К;
- максимальная температура оболочки твэлов не превышает температуры плавления 1700 К, следовательно, их целостность сохраняется.

Оценка теплового состояния ловушки и корпуса ампулы WF при возможном образовании и падении расплава в ловушку.

Условия проведения расчета

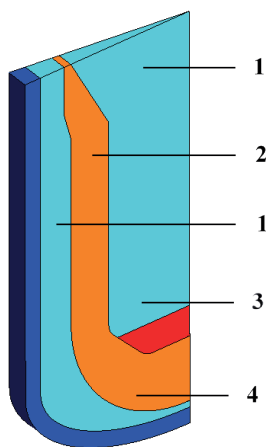
Задачей расчета являлось определение теплового состояния ловушки расплава и корпусов ампулы при плавлении топлива и перемещении расплава в полость ловушки.

Осесимметричная двумерная расчетная модель включает в себя стакан ловушки расплава, корпус ампулы WF, гомогенизированную смесь из расплава топливной композиции и расплава стальных конструктивных элементов, а также объема азота, заполняющего свободное пространство в расчетной модели (рисунок 2.20).

При проведении теплового расчета ловушки расплава были приняты следующие допущения:

- расплав всех топливных таблеток твэлов, стальных элементов твэла, а также нижнего чехла и талрепа испытательной секции мгновенно перемещается в полость ловушки бассейна;
- моделируемый расплав состоит из смеси расплава топливных таблеток (0,166 кг), расплава стальных элементов конструкции испытательной секции (0,606 кг);
- на наружной поверхности стакана ловушки расплава происходит конвективный теплообмен с окружающей средой с коэффициентом теплоотдачи $5 \text{ Вт}/(\text{м}^2 \times \text{К})$;
- теплообмен в зазоре между корпусом ампулы WF и ловушкой, передача тепла от расплава в ловушку, со свободной поверхности расплава осуществляется за счет теплопроводности;
- начальная температура расплава – 3200 К;
- охлаждение корпуса ампулы отсутствует.

Расчет проведен с учетом зависимости свойств материалов от температуры, включая скрытую теплоту плавления.



1 – азот; 2 – ловушка; 3 – расплав топлива и элементов испытательной секции;
4 – корпус ампулы WF

Рисунок 2.20. Модель для расчета

Результаты расчета

На рисунке 2.21 представлено изменение максимальной температуры расплава, ловушки и корпуса ампулы WF в течение 600 с от момента перемещения расплава в ловушку. В промежутке времени от 120 с до 180 с наблюдается застывание расплава. Максимальная температура ловушки 1060 К достигается через 18 с после момента падения расплава в ловушку.

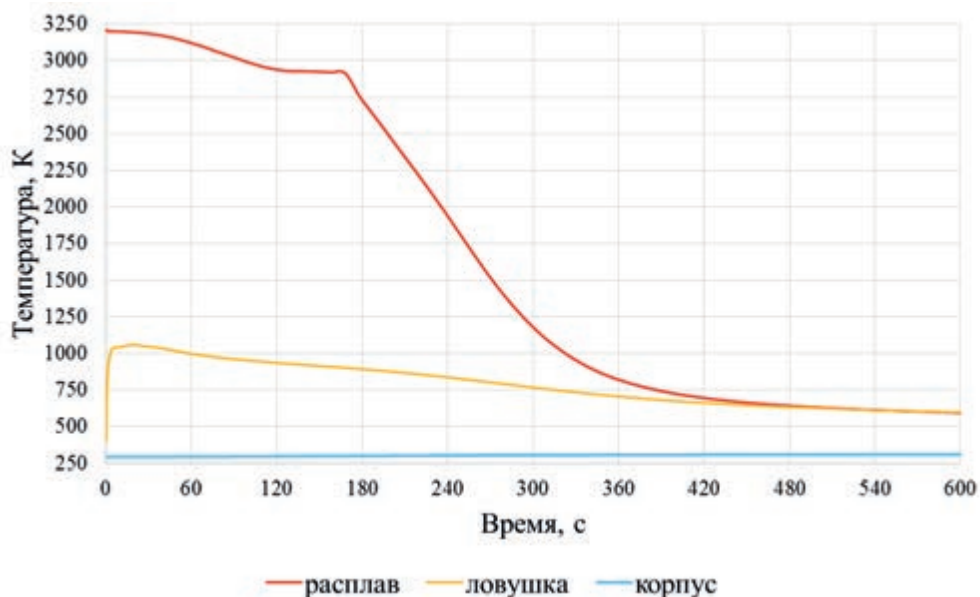


Рисунок 2.21. Изменение средней температуры элементов ЭУ с КН в наиболее термонапряженных точках в течение 600 с после перемещения расплава в ловушку

Максимальная температура затвердевшего расплава через 7,5 с после слива расплава составит 715 К, через 600 с – 597 К, через 3600 с – 420 К, через 7200 с – 401 К (рисунок 2.22).

В соответствии с результатами расчетов тепловое состояние ЭУ с КН, в случае перемещения всего расплава в ловушку и без охлаждения корпуса ампулы WF, характеризуется следующими параметрами:

- максимальная температура корпуса ампулы не превысит 315 К, при максимальном рабочем значении 623 К [2];
- максимальная температура стакана ловушки расплава 1060 К фиксируется в месте контакта расплава с внутренней поверхностью стакана ловушки через 7,5 с от момента перемещения расплава в ловушку, запас до температуры плавления стакана ловушки составит 560 К.

Результаты расчетов показывают, что ловушка обеспечивает достаточную термическую защиту корпуса ампулы WF.

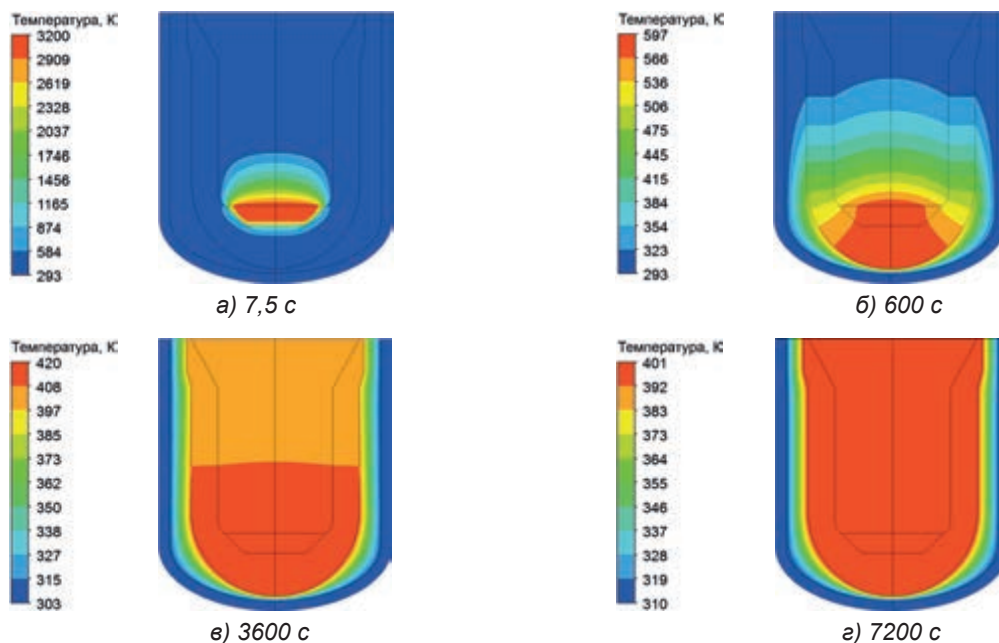
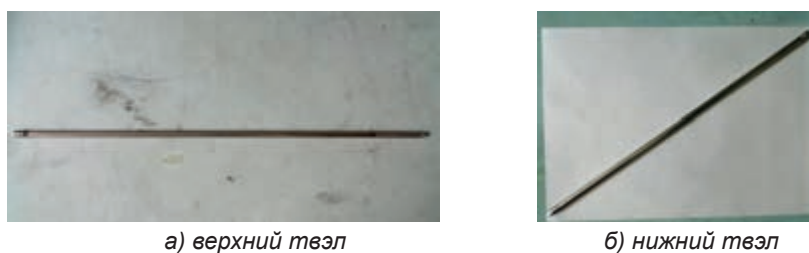


Рисунок 2.22. Температурное поле в различные моменты времени после перемещения расплава в ловушку

2.5 Сборка ЭУ

Сборка элементов испытательной секции, ловушки расплава и оболочки твэла проводилась в экспериментально-механическом цехе и лабораториях, расположенных в г. Курчатов с помощью технологии лазерной сварки тонкостенной стальной оболочки. Конструктивно твэлы состоят из обечайки, к торцам которой герметично приварены крышка, переходники и дистанционаторы (рисунок 2.23).



а) верхний твэл
б) нижний твэл

Рисунок 2.23. Верхний и нижний твэлы

Чехол верхний (рисунок 2.24а на стр.92) представляет собой сварную конструкцию, состоящую из наружной и внутренней обечайки. Нижний торец наружной обечайки приварен к днищу, сверху наружная обечайка приварена к внутренней обечайке через крышку. К нижнему торцу внутренней обечайки приваривается кольцо, к кольцу

приварен тепловой экран. Снаружи теплового экрана устанавливается кадмиевый поглотитель, который крепится к теплому экрану с помощью двух хомутов. К обечайкам наружной и внутренней приварены штуцеры Ду4 и Ду1. К днищу приварена штанга с резьбой М10 на конце. Чехол нижний (рисунок 2.24б) состоит из внутренней обечайки, к верхнему торцу которой приварено днище. Сверху внутренней обечайки приварена крышка верхняя и обечайка наружная с размерами 22×1 мм, к нижнему торцу наружной обечайки приварена крышка нижняя. К внутренней обечайке приварены штуцеры Ду4 – для отвода охлаждающего газа и штуцер Ду1 – для установки термопары.



а) чехол верхний



б) чехол нижний

Рисунок 2.24. Верхний и нижний чехлы

Крышка верхняя (рисунок 2.25а) состоит из обечайки и крышки. Сверху к крышке привариваются три штуцера Ду3 для установки импульсной линии и двух термопар. К стенке обечайки приваривается кронштейн с тремя отверстиями ~12 мм для крепления экспериментальной секции в ампуле ЭУ. Крышка нижняя аналогично состоит из обечайки и крышки. Сверху к крышке привариваются два штуцера Ду3 и один штуцер Ду1 для установки импульсной линии и двух термопар. К стенке обечайки приваривается штуцер Ду4 для подсоединения трубопровода азота. Талреп (рисунок 2.25б) предназначен для соединения верхнего и нижнего чехлов между собой и позволяющего установить требуемое расстояние между ними для достижения цели экспериментального исследования.



а) крышка верхняя



б) талреп

Рисунок 2.25. Крышка верхняя и талреп

Для обеспечения возможности восстановления последовательности событий по результатам измерений и требованиям обеспечения текущего контроля состояния ЭУ в процессе подготовки и проведения эксперимента применяются термоэлектрические преобразователи типа ХА (рисунок 2.26) в количестве 22 шт.



Рисунок 2.26. Комплект термоэлектрических преобразователей

Ловушка приема расплава состоит из двух элементов, приваренных друг к другу: стакан и лайнер. На рисунке 2.27а показана ловушка, объем которой рассчитан таким образом, чтобы вместить весь объем расплава топлива и конструкционных материалов, который гипотетически может образоваться в результате возникновения нештатной ситуации. Ловушка состоит из обечайки толщиной 1,5 мм длиной порядка 4 м, которая необходима для предотвращения возможного контакта расплавленного материала со стенками корпуса ампулы. На рисунке 2.27б показана ловушка расплава, приваренная к лайнеру.



а) ловушка расплава



б) ловушка расплава приварена к лайнеру

Рисунок 2.27. Ловушка расплава и ловушка расплава приваренная к лайнеру

Монитор энерговыделения (рисунок 2.28 на стр. 94) необходим для измерения фактического значения энергии, выделившейся во время пуска реактора. Особенность ЭУ с КН в быстрые является то, что в данной конструкции предполагается использование двух мониторов. Расположение мониторов внутри ампулы ЭУ определено таким образом, что позволит получить данные по интегральному энерговыделению в каждом твэле в результате пуска. Для этого изготовлено два комплекта деталей, включающих: стакан, крышку, винт с распорной гайкой и штангу. Изготовлен технологический канал, необходимый для установки и оперативного вывода монитора из испытательной секции для проведения физических измерений после реакторного эксперимента.



Рисунок 2.28. Верхний монитор энерговыделения

Коллектор (рисунок 2.29а) необходим для организации вывода компенсирующих кабелей термопар к гермопроходнику. После приварки коллектора к фланцу крышка ампулы WF обрела внешний вид, показанный на рисунке 2.29б. Также к крышке были приварены штуцеры подачи и отвода охлаждающего азота, штуцеры импульсных линий и предохранительного клапана. В крышке имеется десять отверстий, с помощью которых она крепится к корпусу ампулы шпильками и гайками. Герметичность обеспечивается соединением типа «замок» с медной уплотнительной прокладкой.



а) коллектор крышки ампулы WF

б) крышка с приваренным коллектором и штуцерами

Рисунок 2.29. Крышка с приваренным коллектором и штуцерами

Твэл окружен кадмиевым поглотителем (рисунок 2.30а) и тепловым экраном для предотвращения возможности перегрева кадмия. Детали, из которых собираются твэлы одинаковы, некоторые из них показаны на рисунке 2.30б.



а) кадмиевый поглотитель

б) комплектующие единицы твэлов

Рисунок 2.30. Кадмиевый поглотитель и комплектующие единицы твэлов

Топливо верхней и нижней ТВС размещается в корпусах, в которых организованы тракты для прокачки охлаждающего газа, тепловые экраны и пр. С одного торца обечайки корпусов и трактов закрыты крышками, с другого – заглушками. На боковой поверхности корпуса приварены штуцера для подачи и отвода теплоносителя. На рисунках 2.31а и б показаны комплекты верхних и нижних крышек корпусов ТВС.



а) верхний твэл

б) нижний твэл

Рисунок 2.31. Детали корпуса верхнего и нижнего твэлов

Для вывода ТЭП к блоку регистрации используется гермопроходник (рисунок 2.32). В данном случае изготовлен гермопроходник на пятьдесят контактов, которых достаточно для подключения всех термопар.



Рисунок 2.32. Гермопроходник на 50 контактов

2.6 Подготовка систем реактора и устройства к эксперименту

Снаряжение ЭУ ядерным топливом

После транспортировки собранного ЭУ осуществлена загрузка предварительно отобранными калиброванными топливными таблетками [12] (рисунок 2.33а на стр. 96). Вместе с топливными таблетками были загружены активационные индикаторы в виде спиралевидных проволок из никеля (рисунок 2.33б на стр. 96). Индикаторы в количестве 3 шт. расположены между топливными таблетками в верхней, серединной и нижней части верхнего и нижнего твэла. Индикаторы позволяют получить данные об интегральном потоке нейтронов в теле твэлов ЭУ в результате пуска.



а) топливные таблетки



б) активационный индикатор

Рисунок 2.33. Загрузка топливных таблеток

После загрузки топливных таблеток и активационных индикаторов были приварены заглушки твэлов ручной аргодуговой сваркой. Затем твэлы были установлены в верхний и нижний чехлы соответственно. Последним этапом была сварка верхней и нижней крышки испытательной секции для обеспечения герметичности системы.

Монтаж ЭУ в ЦЭК ИГР

Далее произведена загрузка устройства в ЦЭК реактора (рисунок 2.34). Произведена стыковка газовых полостей ЭУ с технологическими системами комплекса в соответствии с пневматической схемой. Произведена стыковка датчиков ЭУ с регистрации и обработки параметров реактора ИГР.

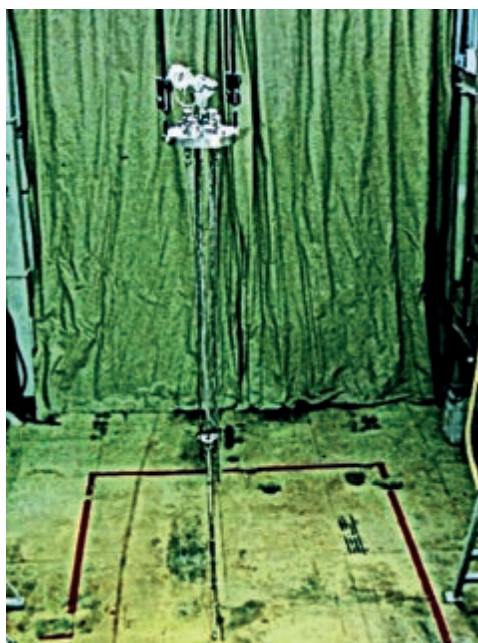


Рисунок 2.34. Загрузка испытательной секции в ЦЭК ИГР

Система регистрации и обработки параметров предназначена для записи и обработки сигналов первичных преобразователей (датчиков) и формирования сигналов (команд) для текущего управления технологическими системами и системами защиты. Таблица 2.9 содержит информацию об основных параметрах данной системы, используемых во время испытания ЭУ с КН.

Таблица 2.9. Технические данные ЭУ с КН

Наименование	Значение параметра
1 Твэлы	
1.1 Масса топлива, кг	
Верхний твэл (UO ₂ с обогащением 17% по ²³⁵ U)	~ 0,080
Нижний твэл (UO ₂ с обогащением 0,27% по ²³⁵ U)	~ 0,086
1.2 Высота топливного столба, мм	
Верхний твэл (UO ₂ с обогащением 17% по ²³⁵ U)	300
Нижний твэл (UO ₂ с обогащением 0,27% по ²³⁵ U)	300
1.5 Оболочка твэлов	
Материал оболочки	X16H15M3Б
Диаметр внешний × толщина стенки, мм	6,9×0,4
2 Корпус испытательной секции	
2.1 Обечайка внутренняя (верхнего и нижнего твэлов)	
Высота, мм	320
Диаметр наружный × толщина стенки, мм	12×1
2.2 Тепловой экран верхнего твэла	
Материал	12X18H10T
Высота, мм	400
Диаметр наружный × толщина стенки, мм	16×1
2.3 Кадмиевый поглотитель	
Высота, мм	400
Диаметр наружный × толщина стенки, мм	18×1
2.4 Обечайка наружная (верхнего и нижнего твэлов)	
Высота, мм	400
Диаметр наружный × толщина стенки, мм	22×1
3 Тракт охлаждения испытательной секции	
3.1 Расход азота, кг/с	0,01
4 Ловушка расплава	
4.1 Внутренний диаметр верхней части (чехол), мм	164
4.2 Внутренний диаметр нижней части (стакан), мм	108
4.3 Высота ловушки, мм	3840
4.4 Толщина стальной стенки верхней части (чехол), мм	1,5
4.5 Толщина стальной стенки нижней части (стакан), мм	25

Наименование	Значение параметра
4.6 Толщина днища, мм	40
5 Ампула	
Полость ампулы	
5.1 Абсолютное давление азота в полости ампулы, кгс/см ²	0,8 – 0,9
Силовой корпус	
5.1 Материал	сталь 12Х18Н10Т
5.2 Рабочее и внутреннее давление, кгс/см ²	≤80
5.3 Рабочая температура стенки корпуса (на участке 2000 мм от нижнего торца ампулы), °С	≤350
5. Максимальная температура крышки ампулы, °С	≤100

2.7 Проведение исследовательского пуска реактора с ЭУ

После подготовительных работ по определению характеристик реактора был выполнен пуск в режиме «импульс». Полость внутреннего корпуса отвакуумирована до давления -0,4 кгс/см². Тракт охлаждения испытательной секции был заполнен азотом до атмосферного давления. Диаграмма изменения мощности реактора в зависимости от заданной приведена на рисунке 2.35.



Рисунок 2.35. Диаграмма изменения мощности в пуске

Положение органов регулирования СУЗ в критическом состоянии и перед пуском реактора, начальная и конечная температура активной зоны (по колонне Г9), разогрев, приведены в таблице 2.10. Значение в ионизационной камере представлены в таблице 2.11. Энерговыведение в активной зоне реактора ИГР составило 5,26 ГДж. Результаты пуска отражены в протоколе [13].

Таблица 2.10. Состояние реактора в критическом положении

Положение органов регулирования в критическом состоянии / перед пуском реактора, мм								Температура АЗ, °С		
ПЧК	ПС-1	ПС-2	ПС-3	АР	РР	КС-1...8	УС-1...3	Нач.	Кон.	Разогрев
Ввк/ввк	615/внк	Ввк/внк	284/284	Ввк/ввк	Ввк/ввк	1203/1203	Ввк/ввк	20	938	918

Таблица 2.11. Значение в ионизационной камере

ИКЗ	ИК4	ИК5	ИК6	ИК8	ИК9	ИК14	ИК16
Максимальное значение тока, мкА							
1,86	12,31	3,76	1,33	0,69	2,43	10,76	145,81
Интегральное значение тока, мкА·с							
1777	11686	3645	1301	681	2284	10327	143558

2.8 Обработка результатов реакторного эксперимента с нагружением твэла в потоке быстрых нейтронов

В процессе пуска регистрировались данные о тепловом состоянии ЭУ с помощью датчиков измерения температуры, установленных в полостях твэлов, испытательной секции, ловушке и силовом корпусе.

Полученные данные о тепловом состоянии элементов конструкции испытательной секции ЭУ с КН показаны на рисунке 2.36. Существенный вклад на изменение температурного режима верхнего твэла вносит кадмиевый поглотитель нейтронов, т.к. наибольшее тепло выделяется именно в нем. Конструкция системы охлаждения верхнего твэла устроена таким образом, что азот на входе в первую очередь охлаждал конвертер, а затем твэл. Это сделано для предотвращения плавления кадмия.

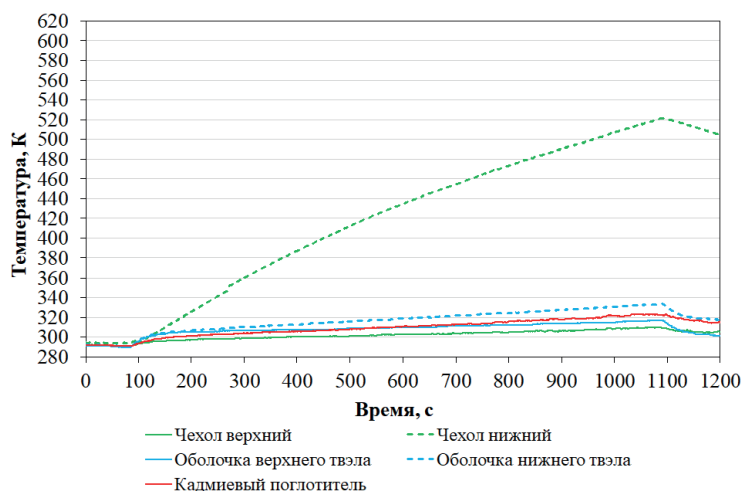


Рисунок 2.36. Температура элементов верхней и нижней сборок испытательной секции

Учитывая низкое обогащение нижнего твэла, температура не превышает 525 К. Однако, температура нижнего чехла заметно больше, чем верхнего чехла, в результате облучения более плотным потоком тепловых нейтронов и заметно более упрощенной системой охлаждения.

На рисунке 2.37 представлена диаграмма изменения температуры топлива верхнего твэла ЭУ по данным, полученным с датчика измерения температуры, установленного в нем, согласно позиции ТТ1 рисунка 2.9. В результате облучения верхнего твэла потоком нейтронов, радиационного разогрева и теплопередачи от кадмиевого поглотителя максимальная температура топлива составила 357,1 К. В связи с этим полученные результаты эксперимента позволяют судить об успешности использованной конструкции охлаждения верхней части испытательной секции.

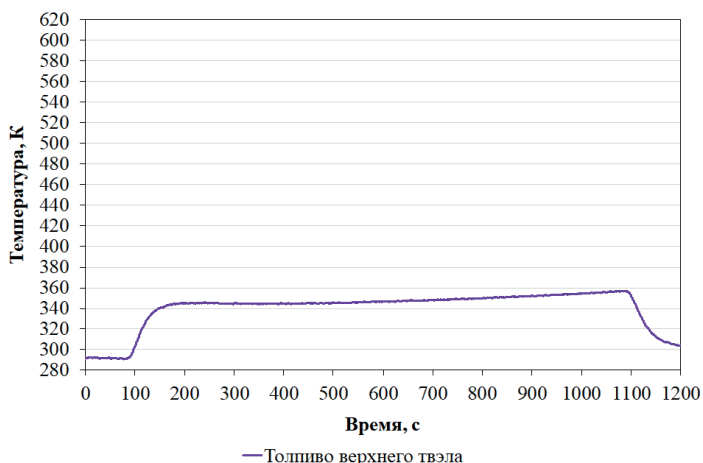


Рисунок 2.37. Изменение температуры топлива верхнего твэла

После проведения пуска был демонтирован верхний монитор, расположенный в специально подготовленном технологическом канале на уровне центра топливного столба верхнего твэла. В таблице 2.12 представлены данные с монитора полученные в результате спектрометрического анализа по результатам исследовательского пуска.

Таблица 2.12. Результаты спектрометрического анализа верхнего монитора

	Число делений, дел/г (UO_2)	Энерговыведение, Дж/г (UO_2)
Исследовательский пуск	$1,05 \cdot 10^{13}$	301

На рисунке 2.38 представлены показания датчиков, установленных на ампуле ЭУ (таблица 2.3). Показания датчиков характеризуются постепенным увеличением скорости роста температуры в результате радиационного разогрева, начиная с момента роста мощности реактора. При этом максимальная температура ампулы не превышает заявленного значения максимальной температуры в 623 К (350 °С) по техническому регламенту устройства. Некоторое увеличение температуры ампулы даже после выхода из стационарного режима облучения реактора и ввода компенсирующих стержней в активную зону реактора объясняется энерговыведением осколков деления. Также в реакторе имеются дополнительные источники тепловой энергии, которые образуются

при активации ядер нейтронами. В различных реакторах этот вклад может достигать 5% от энергии деления урана-235.

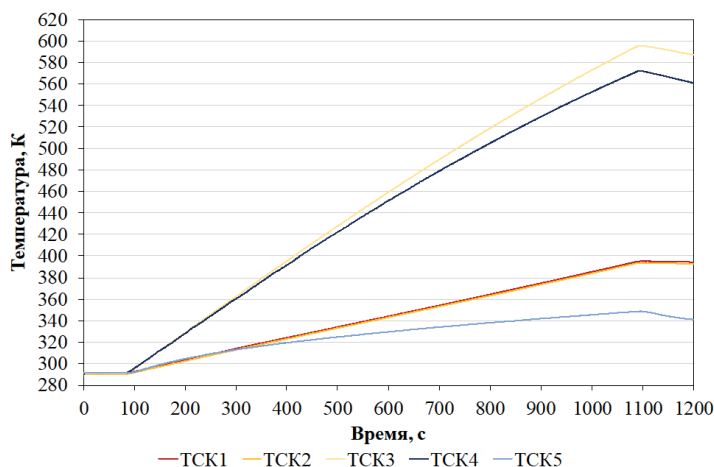


Рисунок 2.38. Температура ампулы ЭУ на отметке плюс 800 относительно ЦАЭ

Заключение

В результате проведенных работ создано техническое устройство – конвертер нейтронов, позволяющее проводить представительные испытания твэлов реакторов на быстрых нейтронах в ЦЭК реактора ИГР. Найдены оптимальные характеристики конвертера, обеспечивающего качественное снижение неравномерности радиального распределения энерговыделения в твэле ЭУ. Проведена подготовка и испытание ЭУ с конвертером тепловых нейтронов на реакторе ИГР. Получены уникальные результаты облучения экспериментального ядерного топлива потоком быстрых нейтронов в ЦЭК реактора ИГР.

Анализ результатов реакторного эксперимента с конвертером нейтронов позволяет сделать следующие рекомендации по мерам, обеспечивающим минимизацию потерь при возникновении тяжелых аварий. Для валидации расчетных кодов, с использованием которых осуществляется анализ безопасности вновь разрабатываемых перспективных реакторов на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем, в целом, и анализ эксплуатационной надежности тепловыделяющих элементов, в частности, могут быть использованы результаты внутриреакторных испытаний на реакторе ИГР модельных твэлов реакторов на быстрых нейтронах. Исследования, проведенные в рамках обсуждаемой темы, подтвердили возможность организации на реакторе ИГР ампульных испытаний модельных твэлов реакторов на быстрых нейтронах с облучением модельных твэлов натурным потоком быстрых нейтронов при условии применения в составе облучательного устройства конвертеров тепловых нейтронов в быстрые. Проведение модельных экспериментов на ИГР с одиночными твэлами реакторов на быстрых нейтронах с обеспечением соответствующего нейтронного спектра позволит получить представительные данные о термомеханических и теплотехнических пара-

метрах исследуемых элементов активной зоны и их поведении в аварийных условиях и на основании этого выработать конкретные меры по минимизации потерь при возникновении тяжелых аварий.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ К ГЛАВЕ 2

1. Устройство экспериментальное с конвертером нейтронов: техническое задание на разработку технического проекта и рабочей документации / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатов, 28.02.2019.– Инв. № 11-220-02/938вн.
2. ПНАЭ Г-7-008-89. Правила устройства и безопасной эксплуатации оборудования и трубопроводов атомных энергетических установок / Госатомэнергонадзор СССР: введ. в действие 01.01.90.– М.: Энергоатомиздат, 1990.– 168 с.
3. ПНАЭ Г-16-34-94 (ОПБ ИР-94). Общие положения обеспечения безопасности исследовательских реакторов / Госатомэнергонадзор СССР.– М.: Энергоатомиздат, 1995.
4. Правила устройства и безопасной эксплуатации установок, работающих со щелочными металлами.– Обнинск, 1995.
5. Выполнение расчетов в обоснование безопасности проведения эксперимента с устройством конвертор нейтронов ИГР: техническая справка от 09.09.2019 инв. №11-220-0134 вн / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; утв. Н.Е. Мухамедов.– Курчатов, 2019.
6. MCNP-5.1.40 Monte-Carlo N-Particle Transport Code; Los Alamos National Laboratory; Los Alamos, New Mexico.– April 24, 2003.
7. А. с. ИС 006968 от 27.12.16 Республика Казахстан. Компьютерная модель реактора ИГР для стационарных нейтронно-физических расчетов / А.Д. Вурим, В.М. Котов, Р.А. Иркимбеков, Л.К. Жагипарова, А.А. Байгожина.– № 2738; 27.12.2016.– 1 с.
8. Определение распределения энерговыделения в канале ID3 реактора ИГР / Л.К. Жагипарова, Р.А. Иркимбеков // Актуальные вопросы мирного использования атомной энергии: доклады международной конференции-конкурса молодых ученых и специалистов. Алматы, 06-08 июня 2012 г.– Алматы, 2012.– С. 179-189.
9. Методика определения энергетических параметров внутриреакторных импульсных экспериментов: дис. канд. физ-мат. наук.: 01.04.14: защищена 28.12.13 / В. А. Витюк– НИ ТПУ.– Томск, 2013.– 129 с.
10. Энерговыделение в модельной ТВС при тепловых испытаниях в импульсной реакторной установке: дис. канд. физ-мат. наук.: 01.04.14: защищена 07.10.16 / Р.А. Иркимбеков– НИ ТПУ.– Томск, 2016.– 129 с.
11. GAMBIT 2.4.6, Fluent inc, 2008.
12. Решение о загрузке топлива экспериментального устройства с конвертером нейтронов: от 01.06.2020 инв. №11-220-01/949вн / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; утв. В.С. Гныря.– Курчатов, 2020.
13. По результатам пуска 189Т-6 (эксперимент «Конвертер»): протокол от 23.11.2020 инв. №Э/636 / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; утв. А.Н. Котляр.– Курчатов, 2020.

Г Л А В А 3

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ПРЕОБРАЗОВАНИЯ ЭНЕРГИИ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ В ЭНЕРГИЮ ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

*Самарханов К.К., Хасенов М.У., Гордиенко Ю.Н., Понкратов Ю.В., Тулубаев Е.Ю.,
Бочков В.С., Карамбаева И.С., Толмачев С.В., Слюянов А.Н.*

Введение

Прямое преобразование энергии ядерных реакций в оптическое излучение является важной технической задачей, имеющей большое практическое значение. Ее решение позволит создать высокоэффективные энергонасыщенные источники когерентного и некогерентного светового излучения. Одноступенчатый характер преобразования энергии ядерных реакций в световое излучение, минуя промежуточные стадии тепловой, механической и электрической энергии, предопределяет более высокий КПД, а устройства на его основе имеют низкие весогабаритные характеристики по сравнению с аналогичными устройствами традиционного типа. Прямое преобразование энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения может использоваться для обеспечения дополнительной системы безопасности ядерного реактора, когда рабочий поток тепловых нейтронов ядерного реактора несколько меньше порогового значения лазера с прямой ядерной накачкой. Кроме того, исследования оптического излучения ядерно-возбуждаемой плазмы, образованной продуктами ядерных реакций, представляет интерес для разработки способа вывода энергии из ядерного реактора путем прямого преобразования ее в световую энергию [1,2,3].

Экспериментальные методы исследования физико-химического состояния низкотемпературной плазмы, применяемой в различных научно-технических и производственных целях, в последнее время получили большое развитие. Это связано, в основном, с успехами в термоядерных исследованиях, с конструированием реакторного двигателя с плазмой в качестве рабочего тела, развитием лазерной техники, плазмохимии и различных методов прямого преобразования ядерной энергии в электрическую. Возможным практическим применением ядерно-возбуждаемых активных сред, образованных ионизирующим излучением, станет их использование в термоядерных реакторах для утилизации энергии быстрых нейтронов, а также в гибридном ядерно-термоядерном реакторе, представляющем собой ядерно-безопасный источник ядерной энергии. [4] В статье [5] приводятся экспериментальные исследования, в которых описывается возможность использования метода оптической диагностики высокотемпературной плазмы в термоядерных реакторах.

Прямое преобразование энергии ядерных реакций в световую энергию к настоящему времени реализовано только в газовых лазерах с активной средой в виде газов, паров металлов или их смесей. Известные в настоящее время активные газовые среды излучают в спектральном диапазоне от 391 нм до 5600 нм примерно на 50 переходах атомов Xe, Ar, Kr, Ne, C, N, Cl, O, I, Hg, ионов Cd^+ , Zn^+ , Hg^+ , молекулы CO и молекулярного иона N_2^+ . Наиболее подробно исследованы газовые среды на переходах атома ксенона, получены рекордные значения импульсной мощности 1,3 МВт и энергии в импульсе 520 Дж [6, 7]. Несмотря на то, что исследования оптического излучения плазмы газовых сред, образованной ионизирующим излучением, начались более 50 лет назад, исследования в этом направлении нельзя считать завершенными, кроме того, число экспериментальных работ, выполненных непосредственно на ядерном реакторе невелико.

В связи с вышесказанным, исследования процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения являются актуальными и имеют важное научное и практическое значение.

В Филиале ИАЭ РГП НЯЦ РК в рамках работ научно-технической программы «Развитие атомной энергии в Республике Казахстан» в период с 2018 по 2020 гг. на исследовательском ядерном реакторе ИВГ.1М выполнялись работы, целью которых являлось получение новых экспериментальных данных о спектральных параметрах газовых сред, обладающих высоким коэффициентом преобразования ядерной энергии в энергию оптического излучения.

Так, в 2018 году была проведена модернизация реакторного экспериментального стенда ЛИАНА для проведения экспериментов по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик газовых смесей на основе инертных газов. Разработано и изготовлено ампульное устройство (АУ) с литиевой ячейкой для проведения реакторных экспериментов по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик газовых сред, возбуждаемых продуктами ядерной реакции ${}^6Li(n,\alpha){}^3H$.

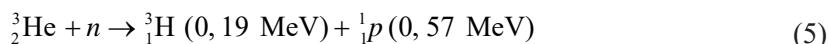
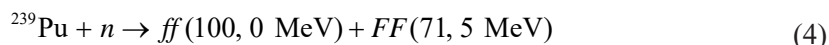
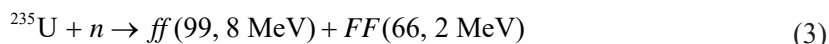
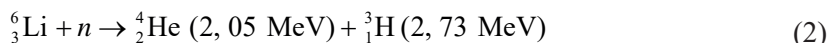
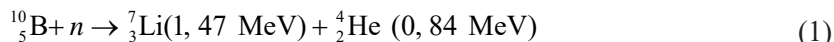
В 2019 году в рамках этапа «Проведение реакторных экспериментов по исследованию оптического излучения многокомпонентных газовых смесей» была отработана методика проведения реакторных экспериментов по исследованию оптического излучения газовых смесей. Получены новые данные по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик многокомпонентных газовых сред. Разработана конструкция АУ для проведения реакторных экспериментов по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик газовых смесей с парами металлов. По результатам выполненных работ в период с 2018 г. по 2019 г. было выпущено два промежуточных отчета о НИР [8,9].

Работы, выполненные в 2020 году, являлись заключительным этапом начатых ранее исследований. Целью НИР в 2020 году по настоящей теме было получение новых данных по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик ядерно-возбуждаемой плазмы с парами металлов, в широком диапазоне температур.

Результаты работ, выполненных по теме за весь период 2018-2020 гг. отражены в научных публикациях и кратко представлены в настоящей главе.

3.1 Способы и источники возбуждения газовых смесей продуктами ядерных реакций

В экспериментах по исследованию оптического излучения ядерно-возбуждаемой плазмы проводимых на ядерных реакторах непосредственное возбуждение активных газовых сред осуществляется, как правило, не с помощью нейтронного излучения, а при использовании продуктов экзотермических ядерных реакций, протекающих при взаимодействии тепловых нейтронов с ядрами ^{10}B , ^6Li , ^{235}U , ^{239}Pu , ^3He [10,11].



Сечение этих реакций для тепловых нейтронов составляют: 4010 барн (^{10}B), 945 барн (^6Li), 582,9 барн (^{235}U), 742 барн (^{239}Pu), 5400 барн (^3He).

Для эффективного возбуждения газовой среды необходимо, чтобы изотопы, взаимодействующие с нейтронами, находились в непосредственном контакте с газовой средой. Существуют два возможных способа использования энергии ядерных реакций для ионизации и возбуждения плазмы – использование поверхностных источников заряженных частиц (внутренняя поверхность лазерной камеры покрывается тонким слоем изотопа ^{10}B , ^6Li , ^{235}U или его соединения $^{235}\text{UO}_2$, $^{235}\text{U}_3\text{O}_8$) и объемных источников заряженных частиц (газообразный изотоп или его соединения: ^3He , $^{235}\text{UF}_6$, $^{10}\text{BF}_3$ входят в состав рабочей газовой смеси), см. рисунок 3.1.

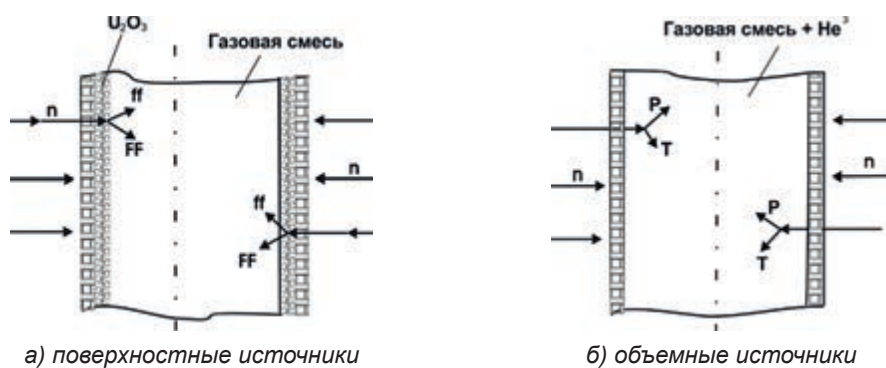


Рисунок 3.1. Способы возбуждения газовых сред продуктами ядерных реакция

Проводимые «пионерские» работы с использованием лития в качестве поверхностного источника возбуждения газовых сред в активной зоне ядерного реактора, вместо широко применявшихся ранее осколков деления урана, продуктов ядерных реакций $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ и $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, были направлены на поиск и изучение газовых сред,

обладающих высокой эффективностью преобразования энергии ядерных реакций в оптическое излучение.

3.2 Использование лития в качестве источника возбуждения газовых сред в активной зоне ядерного реактора

Свойства лития к настоящему времени в достаточной степени изучены [12, 13]. Литий имеет валентную конфигурацию (основной терм) $2s^2S_{1/2}$. Потенциалы ионизации лития относительно высоки: $J_1 - 5,3918$ эВ, $J_2 - 75,641$ эВ и $J_3 - 122,45$ эВ. На рисунке 3.2 представлена комбинированная диаграмма уровней энергии [14], спектра и сил осцилляторов перехода для атома лития.

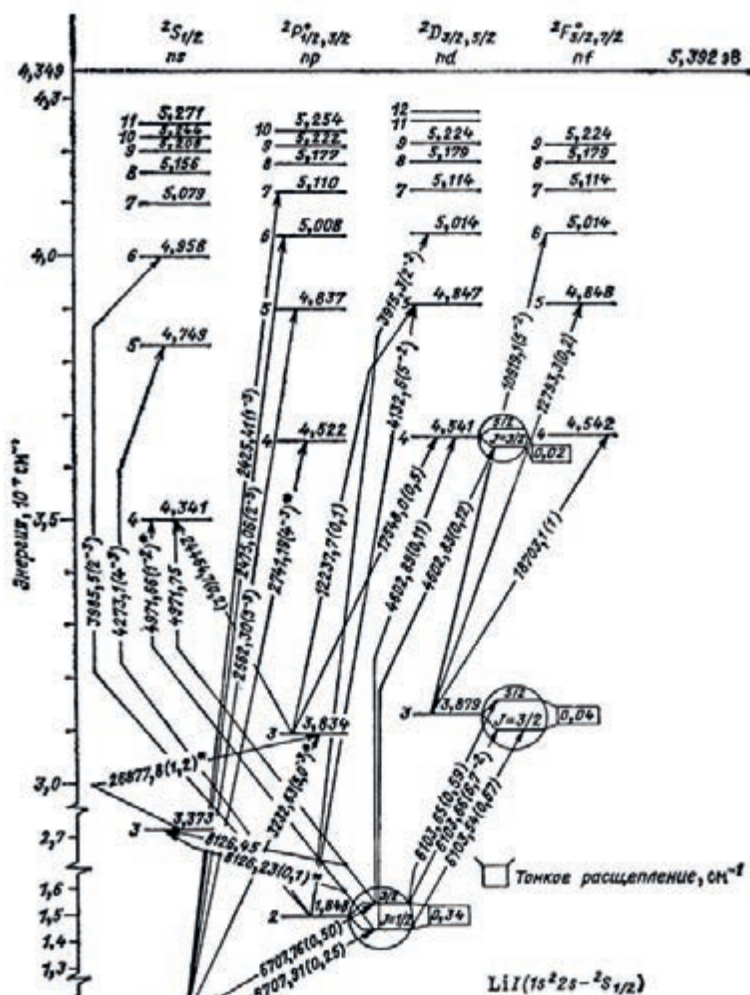


Рисунок 3.2. Диаграмма уровней энергии для атома лития

Одними из важнейших характеристик лития являются его температура плавления, которая составляет 453 К и температура кипения 1616 К. Данный температурный диапазон состояния лития в жидкой фазе определяет возможность использования его как элемента, контактирующего с плазмой, так и в качестве тритийвоспроизводящего материала в blankets термоядерных энергетических установок, а также в качестве защиты от высоких тепловых нагрузок материалов, обращенных к плазме в различных энергетических системах термоядерных реакторов [15 - 17].

Пары лития, как и других щелочных металлов, представляют собой смесь атомарного и молекулярного пара вследствие эффекта димеризации. Давление насыщенных паров лития рассчитывается по формуле:

$$\lg P = 12,4037 - \frac{8283,1}{T} - 0,7081 \cdot \lg T.$$

Для получения спектра лития пригодны различные методы возбуждения. В работе [18] представлены первые экспериментальные результаты с литиевым лимитером, полученные на токамаке FTU – Frascati Tokamak Upgrade (г. Фраскати, Италия). С помощью спектроскопической диагностики в видимом диапазоне был проведен анализ удержания дейтерия и оценки потоков лития. Данная диагностика является эффективным инструментом для решения проблемы энергетических выбросов, представляющих собой важнейший вопрос для термоядерных устройств.

Сечения реакций ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ и ${}^7\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ в зависимости от энергии нейтронов приведены на рисунке 3.3.

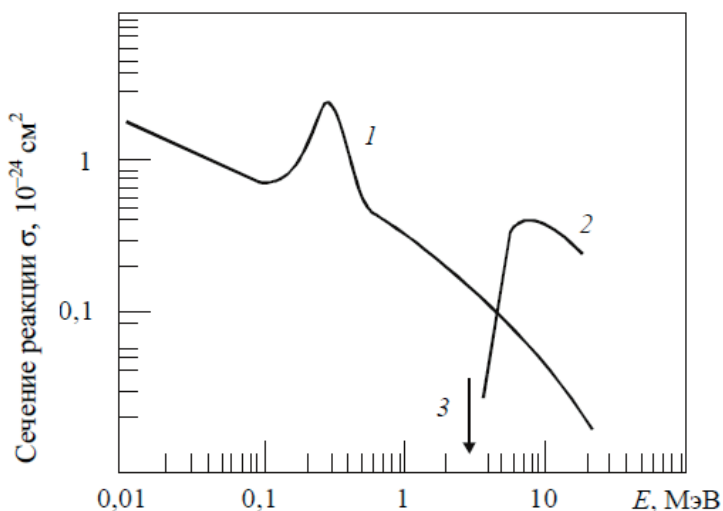


Рисунок 3.3. Сечения реакций ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ (1) и ${}^7\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ (2) в зависимости от энергии нейтронов; 3 – пороговая энергия реакции ${}^7\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$

В таблице 3.1 (см. стр.108) представлены некоторые реакции взаимодействия ядер лития и его изотопов с нейтронами.

Таблица 3.1. Реакции взаимодействия изотопов лития с нейтронами

Реакции	Сечение реакций, барн	
	$E_0 = 0,025$ эВ	$E_0 = 14$ МэВ
${}^6_3\text{Li} + n \rightarrow {}^4_2\text{He} + {}^3_1\text{H}$	940,3	$28,04 \cdot 10^{-3}$
${}^6_3\text{Li} + n \rightarrow {}^6_2\text{He} + {}^1_1\text{P}$	$E_{\text{пор}} = 3,85$ МэВ	$6,76 \cdot 10^{-3}$
${}^6_2\text{He} \rightarrow 2 {}^3_1\text{H}$		
${}^6_3\text{Li} + n \rightarrow {}^4_2\text{He} + {}^2_1\text{D} + n$		
${}^7_3\text{Li} + n \rightarrow {}^6_3\text{Li} + n$	$E_{\text{пор}} = 8,3$ МэВ	0,07
${}^7_3\text{Li} + n \rightarrow {}^6_2\text{He} + {}^1_1\text{P} + n$		
${}^7_3\text{Li} + n \rightarrow {}^6_2\text{He} + {}^2_1\text{D}$	$E_{\text{пор}} = 8,86$ МэВ	$9,76 \cdot 10^{-3}$
${}^7_3\text{Li} + n \rightarrow {}^4_2\text{He} + {}^2_1\text{D} + 2n$		

В качестве источника нейтронного потока для осуществления ядерных реакций ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ и возбуждения газовых сред в экспериментах по исследованию спектров люминесценции активных газовых сред использовался исследовательский ядерный реактор ИВГ.1М.

3.3 Экспериментальное оборудование, используемое в экспериментах

Исследования спектрально-люминесцентных характеристик газовых смесей проводились на ранее созданных экспериментальных установках и стендах, которые были модернизированы в процессе проведения исследований. Описанию этих установок посвящен данный раздел.

Реактор ИВГ.1М

Большинство экспериментальных работ, связанных с исследованиями в области преобразования кинетической энергии продуктов ядерных реакций в оптическое излучение выполнены на импульсных ядерных реакторах.

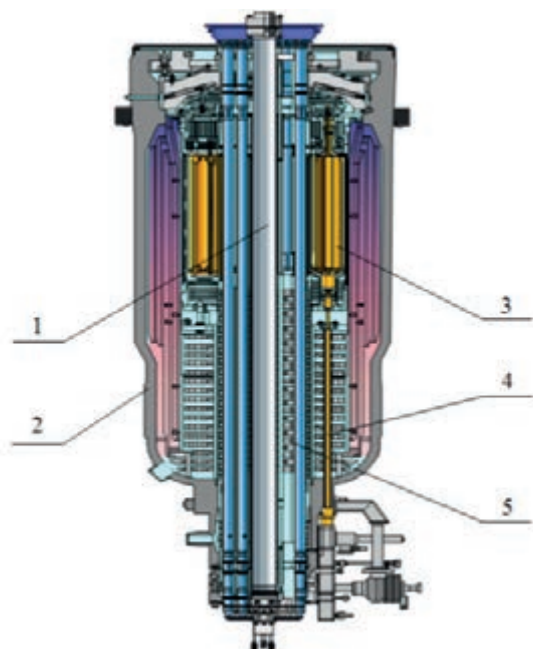
В то же время, на исследовательских ядерных реакторах, обеспечивающих возможность длительной работы на постоянной мощности – в стационарном режиме, успешно проводились экспериментальные работы по изучению спектрально-люминесцентных характеристик ядерно-возбуждаемой плазмы. Несмотря на относительно небольшие нейтронные потоки, наличие непрерывного источника возбуждения позволяет достаточно подробно изучать излучение ядерно-возбуждаемой плазмы в широком диапазоне исследуемых параметров (температур, давлений исследуемых газовых смесей).

В данных исследованиях в качестве источников нейтронного потока использовался водоохлаждаемый гетерогенный исследовательский ядерный реактор ИВГ.1М

(рисунок 3.4) корпусного типа на тепловых нейтронах с легководным замедлителем и теплоносителем, с бериллиевым отражателем нейтронов.

Активная зона реактора содержит 30 водоохлаждаемых технологических каналов (ВОТК), установленных в ячейках трех кольцевых рядов. В центральной части реактора расположен центральный петлевой канал с бериллиевым вытеснителем и корпусом физического экспериментального канала (ФКЭ).

Корпус ФКЭ используется в качестве канала для размещения экспериментального облучательного АУ, при этом центр активной зоны реактора находится на расстоянии 1890 мм от верхнего торца удлинителя ФКЭ. Удлинитель предназначен для предотвращения попадания внутрь ФКЭ воды охлаждения реактора. Диаметр канала составляет 67 мм.



1 – центральный канал; 2 – корпус реактора; 3 – регулирующий барабан (РБ);
4 – привод исполнительного механизма РБ; 5 – железобетонная защита

Рисунок 3.4. Исследовательский ядерный реактор ИВГ.1М

Основные технические характеристики реактора ИВГ.1М приведены в таблице 3.2.

Таблица 3.2. Технические характеристики реактора ИВГ.1М

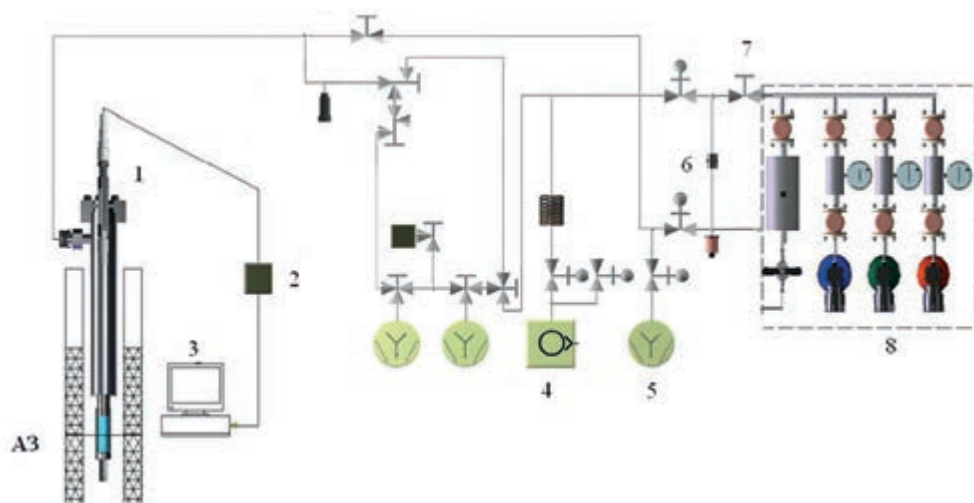
Тепловая мощность, МВт	72
Количество урана-235 в активной зоне, кг	4,6
Высота активной зоны, мм	800
Эффективный размер активной зоны, мм	548
Максимальная температура воды, °С	95

Характеристика реакторного излучения, распределение потока нейтронов и гамма квантов по высоте ФКЭ приведена в [19]. Эксперименты по исследованию процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения проводились на экспериментальном стенде ЛИАНА [20], размещенном в реакторном помещении исследовательского ядерного реактора ИВГ.1М.

Экспериментальный стенд ЛИАНА

Экспериментальный стенда ЛИАНА, изначально был предназначен для проведения исследования процессов массопереноса изотопов водорода в конструкционных материалах ядерных и термоядерных установок в условиях облучения на реакторе ИВГ.1М [21-25]. Подробное описание экспериментального стенда представлено в [26]. Для проведения экспериментов по исследованию спектров люминесценции газовых смесей была проведена модернизация экспериментального стенда, которая заключалась в доработке системы напуска и доукомплектации информационно-измерительного комплекса (ИИК) аппаратурой и приборами, которые преобразуют измеряемые оптические характеристики светового излучения ядерно-возбуждаемой плазмы в отсчеты регистрирующих устройств, наблюдаемые экспериментатором и накапливаемые в памяти ЭВМ.

На рисунке 3.5 приведена принципиальная схема экспериментального стенда ЛИАНА после модернизации.



1 – АУ; 2 – оптический спектрометр QE-65 Pro; 3 – компьютер; 4 – спиральный форвакуумный насос; 5 – магнеторазрядный высоковакуумный насос; 6 – палладий – серебряный фильтр; 7 – механический вакуумный вентиль; 8 – система подготовки смеси газов

Рисунок 3.5. Принципиальная схема экспериментального стенда ЛИАНА

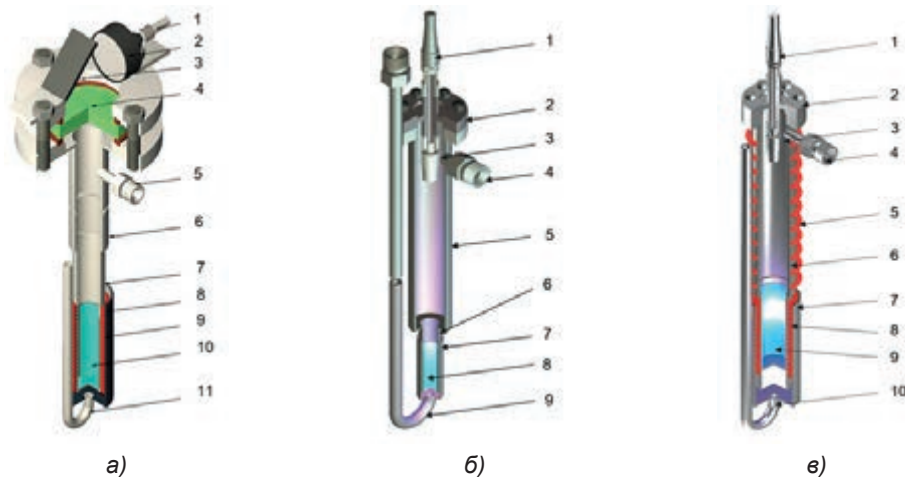
Экспериментальный стенд ЛИАНА функционально состоит из АУ (1) и рабочего блока. Рабочий блок экспериментального стенда, в свою очередь, состоит из вакуумной системы, системы очистки (6), системы напуска исследуемых газов в объем АУ и

информационно-измерительного комплекса. Вакуумная система – двухступенчатая, включает в себя спиральный форвакуумный насос (4) и высоковакуумные магнито-разрядные насосы (5), соединенные трубопроводами с запорными клапанами (7).

АУ обеспечивает: размещение экспериментальной ячейки с исследуемой газовой смесью на уровне ЦАЗ реактора ИВГ.1М внутри корпуса ФКЭ; откачку экспериментальной ячейки; подачу исследуемой газовой смеси в объем экспериментальной ячейки; регулировку и поддержание исследуемого температурного режима стенок экспериментальной ячейки.

Облучательные АУ для проведения экспериментов на реакторе ИВГ.1М

Для проведения реакторных экспериментов по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик многокомпонентных газовых сред в разное время были разработаны и успешно отработаны в реакторных экспериментах облучательные АУ с поверхностным источником заряженных частиц [27]. Во всех вариантах облучательных устройств (рисунок 3.6) в качестве источника заряженных частиц использовался природный литий (с обогащением по изотопу ${}^6\text{Li} - 7,5\%$), нанесенный тонким слоем на внутренние стенки экспериментальной ячейки АУ.



1 – оптоволоконный световод;
 2 – коллиматор;
 3 – поворотное зеркало;
 4 – кварцевое окно;
 5 – тракт откачки и подачи смеси газов; 6 – корпус АУ;
 7 – корпус экспериментальной ячейки; 8 – кожух охлаждения;
 9 – нагреватель; 10 – слой лития; 11 – тракт охлаждения

1 – оптоволоконный световод; 2 – фланец;
 3 – оптический коллиматор; 4 – тракт откачки и подачи смеси газов; 5 – корпус АУ;
 6 – корпус экспериментальной ячейки; 7 – кожух охлаждения;
 8 – слой лития; 9 – тракт охлаждения

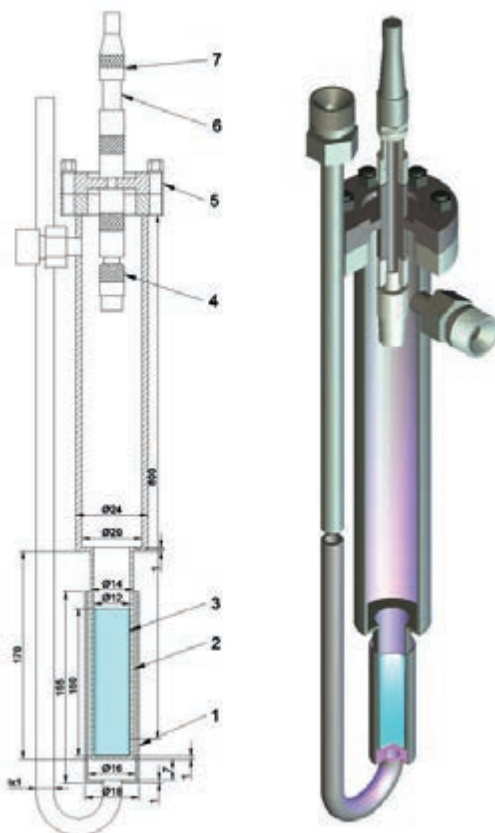
1 – оптоволоконный световод; 2 – фланец;
 3 – оптический коллиматор; 4 – тракт откачки и подачи смеси газов;
 5 – нагреватель; 6 – корпус АУ; 7 – кожух охлаждения;
 8 – нагреватель; 9 – образец литиевой КПС; 10 – тракт охлаждения

Рисунок 3.6. ЗД виды вариантов облучательных АУ с поверхностным источником заряженных частиц

На первом этапе была предложена и успешно отработана концепция АУ с поворотным зеркалом, при наружном расположении коллиматора (COL-UV-30, с диаметром линзы 30 мм). Результаты [28] показали, что наружное расположение коллиматора приводило к ощутимым светопотерям, которые существенно влияли на интенсивность излучения. В изготовленном в 2018 году облучательном устройстве [29] было решено разместить новый радиационно-стойкий коллиматор (74-UV-НТ-ВАС, с диаметром линзы 5 мм) непосредственно внутри АУ. Данное изменение позволило уменьшить объем АУ, что позволило сократить влияние конвективных потоков на кинетику заселения в газо-активной среде.

Разработка и изготовление облучательного устройства по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик многокомпонентных газовых смесей

На основании выполненных конструкторских разработок и чертежей были изготовлены комплектующие детали и проведена сборка облучательного АУ. На рисунках 3.8 представлены фотографии отдельных частей и общий вид созданного АУ.

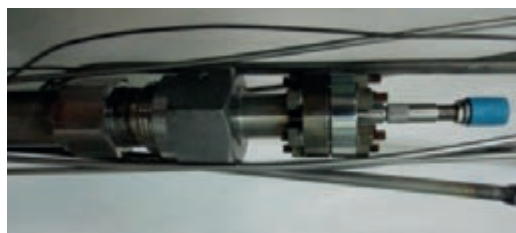


1 – кожух охлаждения, 2 – корпус АУ, 3 – слой лития, 4 – оптический коллиматор, 5 – фланец, 6 – оптический адаптер, 7 – оптический кабель

Рисунок 3.7. Эскизный чертеж и 3D-вид разработанного АУ



а) сварное соединение активной ячейки с корпусом АУ



б) верхний узел АУ



в) общий вид облучательного АУ

Рисунок 3.8. АУ для изучения спектрально-люминесцентных характеристик многокомпонентных газовых смесей

Технические характеристики созданного АУ следующие:

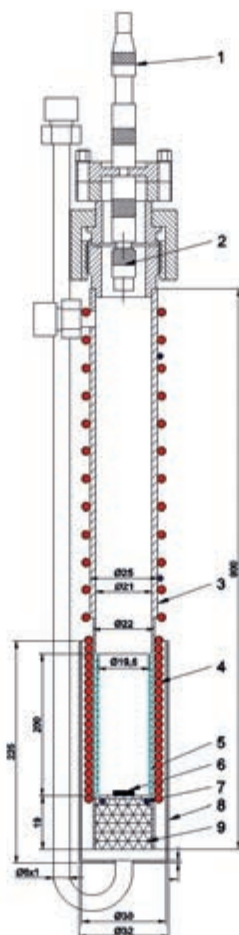
- корпус АУ и экспериментальная ячейка выполнены из стали 12Х18Н10Т;
- размеры АУ: 59 × 900 мм;
- размеры экспериментальной ячейки: диаметр 14 мм; длина 170 мм;
- делящийся материал – природный литий (${}^6\text{Li}$ (7,5%) + ${}^7\text{Li}$ (92,5%));
- размеры слоя лития – высота 150 мм; толщина 0,05 мм;
- вывод светового сигнала осуществляется через оптический коллиматор;
- газовая среда – смесь из инертных газов.

Заключительным этапом изготовления АУ являлись работы по нанесению тонкого слоя лития на внутреннюю поверхность экспериментальной ячейки АУ. Перед процедурой нанесения лития на стенки экспериментальной ячейки корпус АУ и все сварные соединения были проверены на герметичность на экспериментальной установке ВИКА. Натекание в объем АУ составило не более $4,5 \cdot 10^{-14}$ Па·м³/с. Процедура нанесения слоя лития на внутреннюю поверхность экспериментальной ячейки АУ проводилась по ранее разработанной и экспериментально опробованной методике. Подробное описание методики по нанесению слоя лития на поверхность ячейки представлено в [30].

Разработка и изготовление облучательного АУ для проведения реакторных экспериментов с парами металлов

Для проведения реакторных экспериментов по изучению спектрально-люминесцентных характеристик многокомпонентных газовых смесей с парами металлов, была разработана конструкция нового облучательного АУ. При разработке конструкции облучательного АУ с парами металлов за основу была взята конструкция ранее разработанного и экспериментально отработанного АУ [29] с измененной экспериментальной ячейкой. В данной конструкции АУ, в качестве источников заряженных частиц, была использована капиллярно-пористая структура (КПС) заполненная литием. Использование КПС в данной конструкции позволит стабилизировать литий в жидком

состоянии на стенках экспериментальной ячейки при температурах корпуса ячейки выше температуры плавления лития. Данный вариант конструкции АУ позволяет проводить исследования в температурном диапазоне экспериментальной ячейки АУ от 323 К до 723 К. Конструктивная схема ампульного устройства с литиевой КПС и кадмием представлена на рисунке 3.9.



1 – оптоволоконный кабель; 2 – коллиматор; 3 – корпус ампулы (12X18H10T);
4 – нагреватель (кабель КТМС Ø3 мм); 5 – образец литиевой КПС (толщина слоя КПС – 0,2 мм); 6 – образец кадмия; 7 – термопары; 8 – кожух охлаждения;
9 – теплоизоляция

Рисунок 3.9. Конструктивная схема АУ с литиевой КПС и кадмием

Отличие новой конструкции облучательного устройства с парами металлов от предыдущих вариантов является наличие нагревателя по всей длине АУ и термоэлектрических преобразователей, установленных на четырех точках по высоте наружной поверхности устройства, позволяющего контролировать градиент температуры по объему устройства.

Таким образом, новая конструкция АУ имело следующие технические характеристики:

- размеры АУ – 25×900 мм;
- размеры экспериментальной ячейки – диаметр 22 мм; длина 230 мм;
- поверхностный источник заряженных частиц – природный литий (${}^6\text{Li}$ (7,5%)) стабилизированный в нержавеющей КПС;
- размеры слоя лития – высота 200 мм; толщина 0,05 мм;
- вывод светового сигнала осуществлялось через оптический коллиматор;
- газовая среда – инертные газы и их различные смеси.

На основании выполненных конструкторских разработок и чертежей были изготовлены комплектующие облучательного АУ.

На рисунке 3.10а представлены фотографии комплектующих деталей АУ. Все комплектующие детали были изготовлены из коррозионностойкой хромоникелевой аустенитной стали марки 12Х18Н10Т [31]. В реакторных экспериментах использовался новый радиационно-стойкий коллиматор, 74-UV-НТ-ВАС (с диаметром линзы 5 мм), рисунок 3.10б.



а) комплектующие АУ



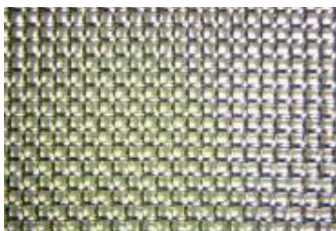
б) верхний узел АУ с коллиматором

Рисунок 3.10. Комплектующие детали экспериментальной ячейки и верхнего узла облучательного АУ

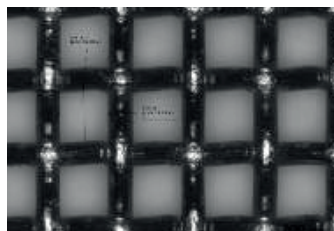
Для изготовления трубчатого источника заряженных частиц – литиевой КПС была использована матрица также из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т. КПС матрица представляла собой сетку тканую (размер ячейки около 100 мкм, толщина проволоки 0,1 мм) с геометрическими размерами $200 \times 19,6 \times 0,2$ мм. Внешний вид сетки из нержавеющей стали с разными увеличениями представлен на рисунке 3.11.



а) внешний вид



б) при увеличении 40×



в) при увеличении 200×

Рисунок 3.11. Матрица КПС при различном увеличении

В качестве источника паров металла и для сравнения разных механизмов излучения (при испарении и распылении металла) в процессе реакторного облучения использовался металлический кадмий. На рисунке 3.12а представлен внешний вид образца кадмия.

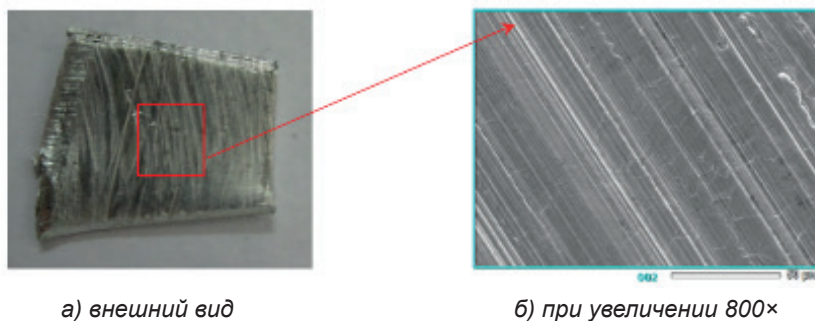


Рисунок 3.12. Образец металлического кадмия

Таким образом, в ходе выполненных работ были изготовлены основные комплектующие детали облучательного АУ. Следующими этапами подготовки АУ к реакторным экспериментам являлось сборка облучательного АУ и заполнение матрицы КПС литием.

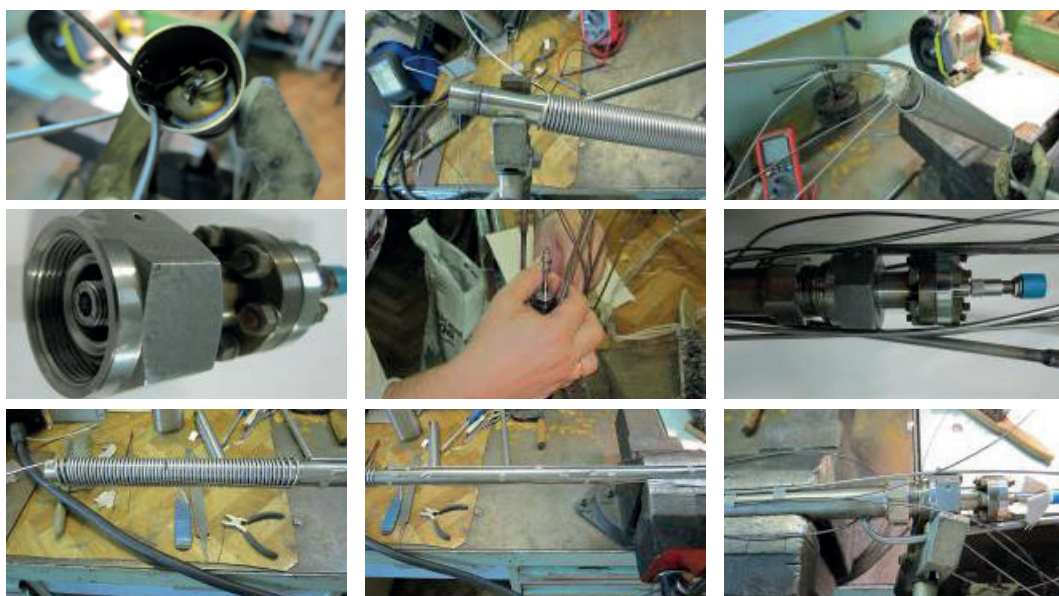
Сборка облучательного АУ

Сборка ампульного устройства проводилась с соблюдением условий вакуумной гигиены. На этапе изготовления АУ матрица КПС была установлена на внутреннюю поверхность экспериментальной ячейки, рисунок 3.13. Перед установкой в экспериментальную ячейку сетка из нержавеющей стали была промыта в ацетоне и спирте поэтапно при помощи ультразвуковой мойки ProsKit SS-803F.



Рисунок 3.13. Размещение матрицы КПС в экспериментальной ячейке АУ

На рисунке 3.14 представлены фотографии на разных этапах сборки АУ. После изготовления АУ [32] корпус и все сварные соединения собранного АУ были проверены на герметичность методом обдува гелием на экспериментальной установке ВИКА, с использованием квадрупольного масс-спектрометра RGA-100. В результате проверки было установлено, что натекание в объем АУ составило не более $4,5 \cdot 10^{-14}$ Па·м³/с, что вполне соответствует вакуумным требованиям, предъявляемым к созданному устройству.



а) монтаж комплектующих



б) внешний вид АУ после сборки

Рисунок 3.14. Этапы сборки облучательного АУ

Процедура заполнения матрицы КПС литием

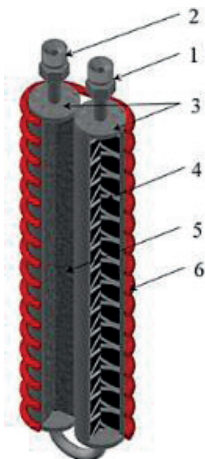
В качестве поверхностного источника заряженных частиц в реакторных экспериментах по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик ядерно-возбуждаемой плазмы, как отмечалось выше, использовался природный литий марки ЛЭ-1 (с обогащением по изотопу ${}^6\text{Li}$ – 7,5%), с содержанием примесей согласно [33] менее 0,1%, стабилизированный в матрице КПС. Фотография исходного материала (лития) используемого в данной конструкции АУ представлена на рисунке 3.15.



Рисунок 3.15. Фотография лития перед загрузкой в АУ

Заполнение матрицы КПС литием проводилось с использованием ранее разработанных и экспериментально отработанных методик [34].

После проверки корпуса АУ на герметичность в экспериментальную ячейку АУ был загружен металлический образец лития марки ЛЭ-1, массой 1,552 г, очищенный методом вакуумной дистилляции и геттерирования. Для более равномерного распределения лития по ячейкам матрицы КПС АУ было расположено в горизонтальном положении относительно пола. Объем АУ откачивался сначала при помощи безмасляного форвакуумного спирального насоса, затем высоковакуумным турбомолекулярным насосом до давления порядка 0,01 Па. После этого, при помощи внешнего омического нагревателя, проводился нагрев экспериментальной ячейки до температуры 570 К. На данной температуре, в течение часа, при непрерывной откачке объема АУ проводилось обезгаживание поверхности лития и КПС. Далее, с целью предотвращения испарения лития за пределы пористой структуры при повышении температуры, откачка АУ прекращалась, и в объем АУ напускался очищенный аргон до давления порядка 0,1 МПа. Фактор очистки аргона необходим для минимизации взаимодействия лития с примесями в газе (N_2 , CO_2 , O_2 , H_2 и др.). Очистка аргона перед напуском в ампулу производилась за счет пропускания смеси через абсорбирующие элементы (титан и оксид меди) системы очистки инертных газов, приведенной на рисунке 3.16. Принцип действия системы очистки заключается в следующем: в первой колонне, заполненной титановой стружкой при температуре 923 К, за счет химической реакции происходит поглощение кислорода и азота, во второй колонне, заполненной порошком оксида меди, происходит удаление CO , водорода и углеводородов из проходящего через колонны газа.



1 – штуцер подачи газа; 2 – штуцер выхода газа; 3 – прогреваемые трубки;
4 – титановая стружка; 5 – порошок оксид меди; 6 – нагреватель

Рисунок 3.16. Система очистки инертных газов

После напуска очищенного аргона в АУ температура стенок экспериментальной ячейки при помощи омического нагревателя поднималась до температуры 770 К и выдерживалась в течение 30 мин. По истечении этого времени температура экспериментальной ячейки АУ поднималась до 1030 К и выдерживалась в таком режиме еще

порядка 15 мин. Данная процедура выполнялась с целью равномерного распределения жидкого лития по пористой структуре КПС и распада гидридов и гидроксидов. После всех вышеописанных процедур нагрев ячейки прекращался и корпус ячейки остывал естественным образом. При достижении температуры 520 К аргон из объема АУ скачивался и, в условиях непрерывной откачки, ячейка остывала до комнатной температуры.

После заполнения матрицы КПС литием, перед загрузкой кадмия, в объем АУ был напущен аргон. Далее ампула вскрывалась для быстрой загрузки образца металлического кадмия массой 1,4248 г на дно АУ. После загрузки кадмия ампула закрывалась и объем АУ был откачен до давления порядка 0,01 Па.

После изготовления АУ были проведены работы по подготовке АУ и стенда ЛИИАНА к реакторным экспериментам, а именно:

- облучательное АУ было загружено в корпус экспериментального канала (ФКЭ) исследовательского реактора ИВГ.1М;
- после монтажа АУ в газо-вакуумную систему стенда ЛИИАНА корпус и все сварные, фланцевые соединения АУ были повторно проверены на герметичность, результаты проверки показали соответствие вакуумным требованиям проведения реакторных экспериментов;
- на информационно-измерительном комплексе стенда ЛИИАНА была обеспечена регистрация показаний мощности реактора ИВГ.1М и термоэлектрических преобразователей, установленных в корпусе АУ;
- проведен отжиг объема АУ, тракта подачи газовых сред и буферных емкостей в условиях непрерывной откачки при температуре 523 К в течение 48 ч;
- проведена отработка рабочих режимов системы контроля и управления температурой экспериментальной ячейки и корпуса АУ с помощью программно-управляемого высокоточного регулятора температуры (ВРТ-3).

Таким образом, экспериментальный стенд ЛИИАНА и облучательное АУ были подготовлены к проведению реакторных экспериментов по исследованию оптического излучения газовых смесей с парами металлов.

3.4 Методика проведения реакторных экспериментов

Методика проведения реакторных экспериментов для исследований, направленных на поиск и изучение газовых сред, обладающих высокой эффективностью преобразования энергии ядерных реакций в световое излучение, была разработана с учетом технологических особенностей исследовательского реактора ИВГ.1М и экспериментального стенда ЛИИАНА, и заключалась в следующем:

- АУ загружалось в экспериментальный канал реактора ИВГ.1М таким образом, чтобы экспериментальная ячейка АУ размещалась на уровне ЦАЗ реактора;
- далее проводилась оценка внесенного ампулой изменения реактивности реактора, после чего АУ подсоединялось к вакуумной системе экспериментального стенда ЛИИАНА и проводились все необходимые технологические процедуры по подготовке загруженного облучательного АУ и стенда ЛИИАНА к проведению реакторных экспериментов;
- перед выходом реактора на заданный уровень мощности, предварительно подготовленная исследуемая смесь газов, набранная в накопительной емкости

(ресивере) с помощью системы напуска подавалась в объем АУ до заданного давления;

- после этого реактор выводился на заданный уровень мощности, и проводились измерения светового потока;
- световое излучение, возникающее в результате возбуждения исследуемой газовой смеси продуктами ядерной реакции ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ под воздействием нейтронного потока, выводилось из ампулы через оптический коллиматор и по оптоволоконному кабелю передавалось на вход оптического спектрометра;
- после измерения спектров люминесценции газовых смесей на всех исследуемых стационарных уровнях мощности проводится плановый останов реактора.

3.5 Результаты реакторных экспериментов

Серия реакторных экспериментов, проводимых на реакторе ИВГ.1М, включала в себя:

- методический эксперимент;
- эксперименты с однокомпонентными газовыми средами;
- эксперименты с многокомпонентными газовыми средами.

Методический реакторный эксперимент

Методический эксперимент проводился с целью отработки режимов проведения реакторного эксперимента, при этом решались следующие задачи:

- 1) отработка режимов напуска и откачки исследуемого газа в объем АУ;
- 2) отработка режимов нагрева и охлаждения экспериментальной ячейки АУ, путем варьирования расхода охлаждающего газа – азота;
- 3) выбор оптимальных параметров регистрации спектров люминесценции во время реакторного эксперимента.

Методический реакторный эксперимент проводился при следующих условиях:

- исследуемые газы – неон (Ne) и гелий (He);
- давление газовой среды в объеме АУ – от 0,13 кПа до 100 кПа;
- исследуемые интервал длин волн – от 300 нм до 1100 нм;
- тепловая мощность реактора ИВГ.1М – 6 МВт;
- температура корпуса экспериментальной ячейки АУ – от 300 К до 400 К;
- в качестве регистрирующей аппаратуры использовался оптический спектрометр USB 2000+ (Ocean Optics).

В результате методического реакторного эксперимента были отработаны:

- основные режимы напуска и откачки исследуемого газа в объем АУ, при этом было определено, что остаточное давление в объеме АУ перед напуском газа не должно превышать 0,13 кПа;
- режимы нагрева и охлаждения экспериментальной ячейки АУ, путем варьирования охлаждающего газа – азота. Оптимальным является режим охлаждения, где расход азота равен 8 г/с, при этом максимальная температура стенок литиевой ячейки не превысит 423 К;
- техника проведения спектральных измерений. Оптимальные параметры времени регистрации для спектров люминесценции, во время реакторного эксперимента задаваемых оператором составили 0,01 с; 0,03 с; 0,1 с; 0,3 с; 1 с; 3 с и 10 с.

Результаты экспериментов показали, что при использовании оптического спектрометра марки USB 2000+ VIS-NIR, фирмы Ocean Optics, на спектрах люминесценции наблюдаются сильные наводки, связанные со спецификой работы данного спектрометра, поэтому, в последующих реакторных экспериментах было принято решение использовать малогабаритный оптический спектрометр научного типа QE65-Pro-abs, фирмы Ocean Optics. Спектрометр QE-Pro-abs имеет преимущество в сравнении с USB2000+VIS-NIR благодаря лучшему разрешению, более широкому спектральному диапазону, значительно большему времени интегрирования для выявления слабых линий излучения. Заметный уровень фона спектрометра компенсируется его стабильностью.

Результаты реакторных экспериментов с однокомпонентными средами

В спектрах инертных газов преобладают линии $n\text{-}n\text{s}$ -переходов (где $n=3, 4, 5, 6$, для неона, аргона, криптона, ксенона, соответственно). Результаты реакторных экспериментов с однокомпонентными средами отражены в [35]. Полученные данные хорошо согласуются с результатами других работ [36].

В спектрах излучения инертных газов преобладают линии, принадлежащие переходам $3\text{p}-3\text{s}$. В неоне, в инфракрасной области также присутствуют линии $3\text{d}-3\text{r}$. Наиболее интенсивными линиями люминесценции неона являлись линии 585,2 нм; 627,5 нм; 638,7 нм; 640,5 нм; 668 нм; 692,9 нм; 703,2 нм и 744,2 нм. По аналогии с методическим экспериментом в коротковолновой части спектра неона присутствовали молекулярные полосы азота (391,4 нм; 427,8 нм; 471 нм), что объясняется наличием примесей.

Результаты реакторных экспериментов с многокомпонентными средами

Реакторные эксперименты с многокомпонентными средами являлись продолжением ранее начатых экспериментов с однокомпонентными инертными газами.

Температура корпуса экспериментальной ячейки в процессе первых реакторных экспериментов с многокомпонентными смесями не превышала 300 К. Однако, для выявления и установления закономерностей формирования излучающих состояний в смесях инертных газов с парами лития требуются диапазон температуры выше температуры плавления лития. Исследование влияния парогазовых сред на основе щелочных металлов на кинетику заселения активных сред является задачей, решение которой необходимо для понимания и уточнения физических процессов, происходящих при создании инверсной заселенности уровней в этих средах, и для получения отсутствующих в литературе констант элементарных процессов. Поэтому дальнейшие реакторные эксперименты с многокомпонентными газовыми смесями He-Ne, He-Ne-Xe, He-Xe и He-D₂, возбуждаемыми продуктами ядерной реакции, проводились в расширенном интервале температуры.

Условия проведения реакторных экспериментов были следующими:

- исследуемые среды – бинарная смесь He-Ne в соотношении He (20 кПа)-Ne (80 кПа), трехкомпонентная среда He-Ne-Xe в соотношении

- (He (20 кПа)-Ne (79,9 кПа)-Xe (0,13 кПа), бинарная смесь He-Xe в соотношении He (73 кПа)-Xe (26,6 кПа), He-D₂ в соотношении He (86 кПа)-D₂ (11,6 кПа);
- давление газовой среды в объеме АУ – до 101 кПа;
 - исследуемый интервал длин волн – от 200 нм до 975 нм;
 - тепловая мощность реактора ИВГ1М – 6 МВт;
 - температура газов во время реакторного эксперимента – ступенчатый нагрев с шагом 50 К, от 323 К до 523 К, в He-D₂ смеси до 970 К;
 - перед выходом реактора ИВГ1.М на стационарную тепловую мощность объем ампульного устройства и тракт подачи газов откачивался до давления порядка 0,13 Па.

Ниже на рисунках 3.17, 3.18 представлены спектры люминесценции гелий-неоновой смеси, зарегистрированных при разных температурах экспериментальной ячейки.

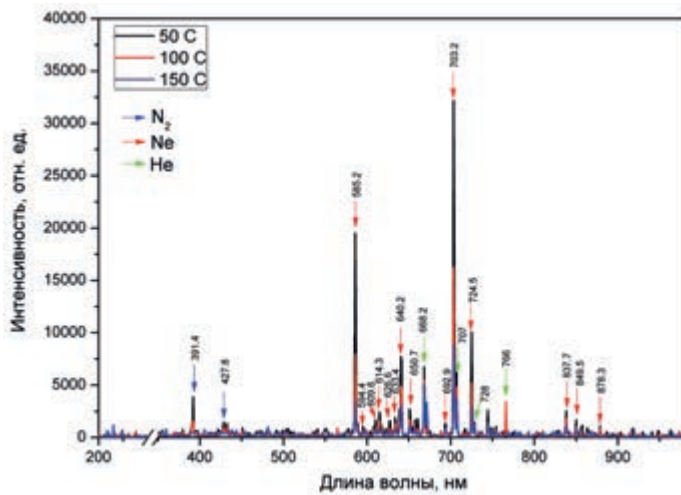


Рисунок 3.17. Спектры излучения гелий-неоновой смеси при (τ=1 с)

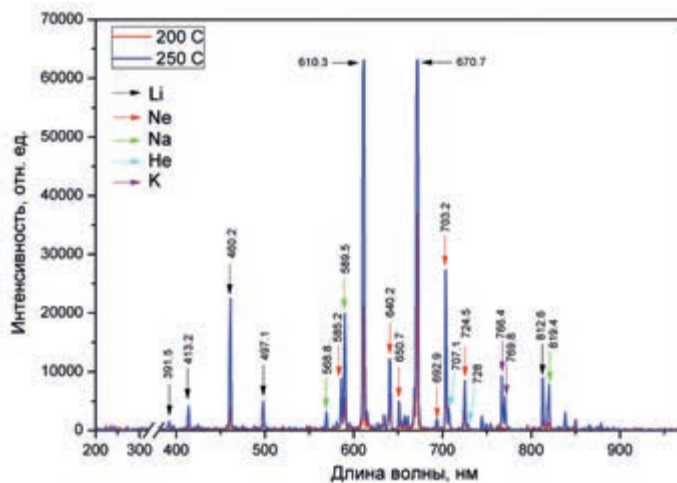
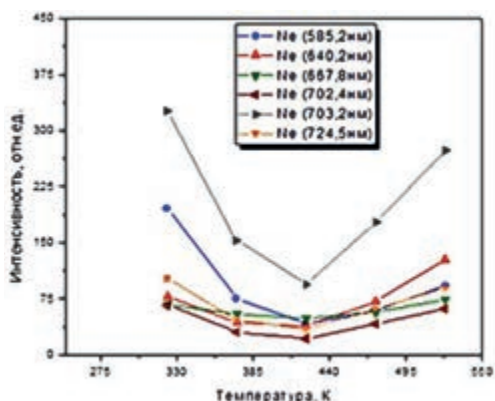
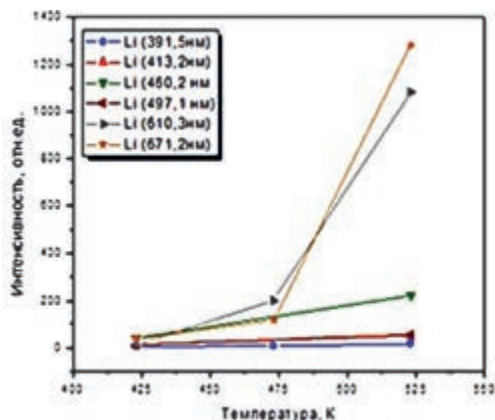


Рисунок 3.18. Спектры излучения гелий-неоновой смеси при (τ=1 с)

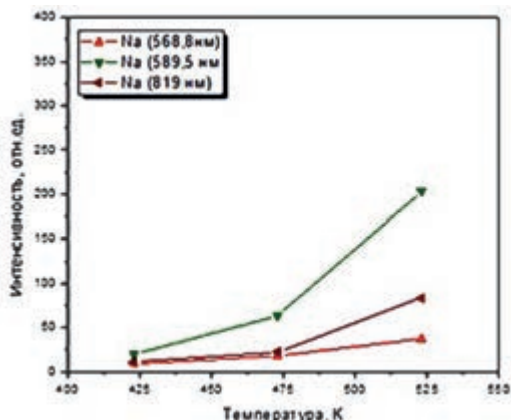
С повышением температуры газовой смеси в спектре излучения появляются линии атомов щелочных металлов. Высвечивается не только литий, но и натрий и калий, содержащиеся в виде примесей в литии. В спектре лития наблюдались резонансные линии на 670,8 нм, а также линии переходов с уровней 5d, 4d, 3d, 4s, 3s на резонансный уровень 2p. Резонансная линия лития была слегка уширена с отклонением в длинноволновую сторону. Аналогично, в спектре натрия присутствуют резонансные линии на 589,0 нм и 589,6 нм (они также не разрешаются спектрометром) и линии переходов с уровней 4d, 3d на 3p-уровень. В спектре калия достаточной для регистрации интенсивностью обладали только резонансные линии на 766,5 нм и 769,9 нм. Графическое отображение (рисунок 3.19) распределения интенсивности излучения исследуемой среды представлены в виде графиков зависимости от температуры.



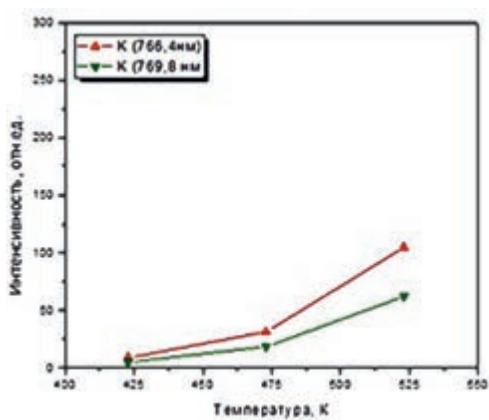
а) в неоне



б) в литии



в) в натрии



г) в калии

Рисунок 3.19. График зависимости от температуры в He-Ne смеси

Ниже на рисунках 3.20 и 3.21 (см. стр. 124) представлены спектры люминесценции трехкомпонентной гелий-неон-ксеноновой смеси, при разных температурах ячейки.

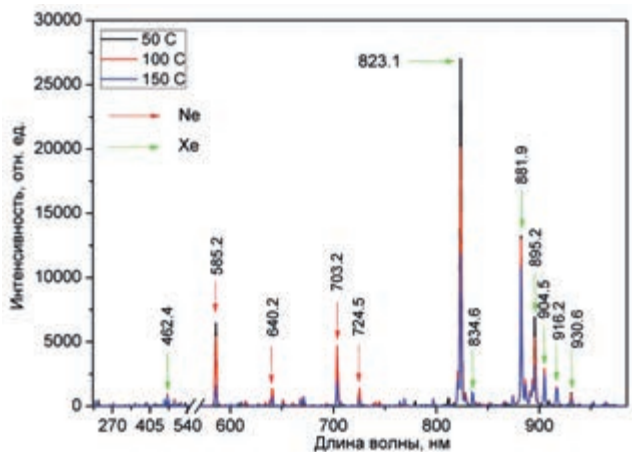


Рисунок 3.20. Спектры люминесценции He– Ne – Xe смеси при ($\tau=0,1$ с)

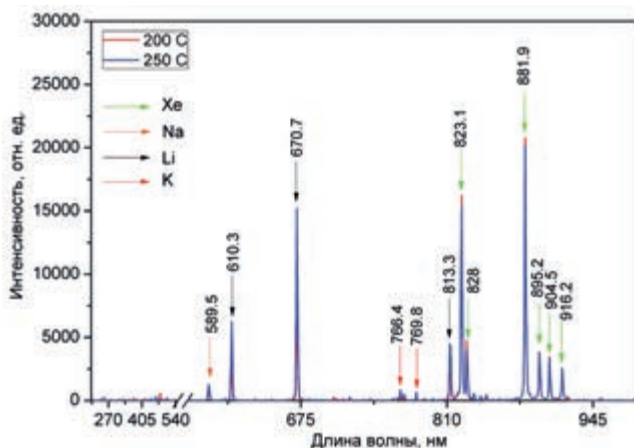
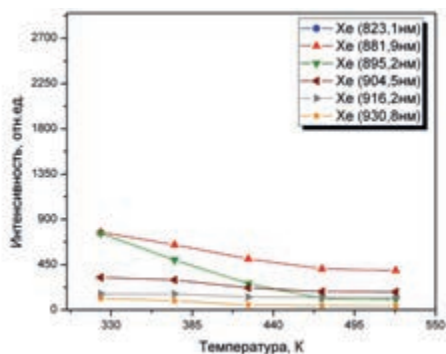


Рисунок 3.21. Спектры люминесценции He– Ne – Xe смеси при ($\tau=0,1$ с)

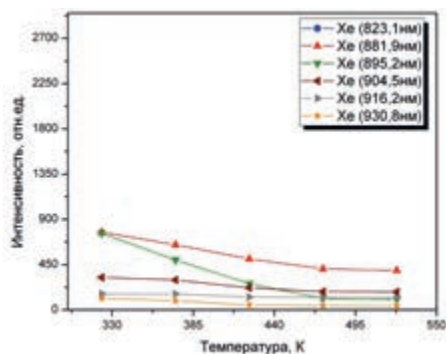
Графическое отображение распределения интенсивности излучения исследуемой среды представлены на рисунке 3.22.

С учетом спектральной чувствительности установки интенсивность резонансных линий лития примерно в 5 раз меньше интенсивности линии 881,9 нм ксенона.

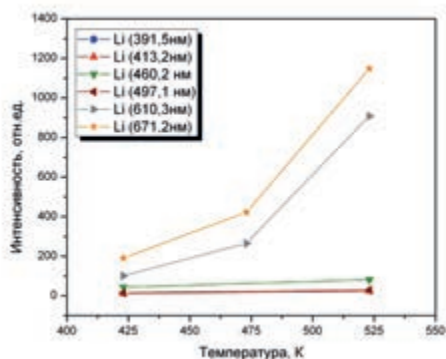
Давление насыщенных паров лития составляет 6,6 Па при температуре 523 К и менее 10 Па при 423 К. При таких чрезвычайно низких давлениях паров невозможна эффективная передача возбуждения от ионов и возбужденных состояний атомов буферного газа атомам лития. По-видимому, излучение на переходах атома лития связано с распылением лития под действием продуктов ядерных реакций. Часть распыленного потока выходит с твердой поверхности в электронно-возбужденном состоянии и приводит к излучению света в объеме за пределами поверхности. Спектральный состав световой эмиссии при распылении металлов отличается при одинаковых условиях возбуждения от спектров люминесценции аналогичных газовых смесей с парами этих же металлов, формируемых за счет термического испарения.



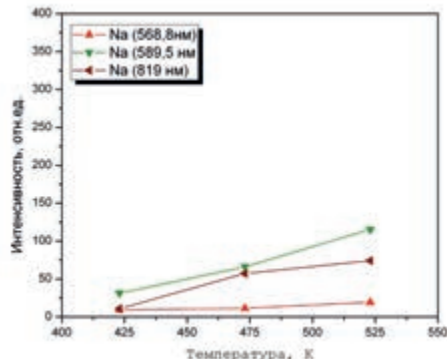
а) в неоне



б) в ксеноне



в) в литии



г) в натрии

Рисунок 3.22. График зависимости от температуры в He-Ne-He смеси

В измеренных спектрах щелочных металлов отсутствуют линии ионов. При распылении лития, а также в результате последующих плазмохимических реакций в объеме газа преимущественно образуются атомы лития в состояниях nd , ns , в переходах с которых заселяется резонансный уровень лития. Оценки с учетом относительной спектральной чувствительности показывают, что суммарная интенсивность переходов на $2p$ -уровень равна интенсивности резонансных линий и вклад прямого заселения уровня несуществен. Длина пробега α -частиц с энергией 2 МэВ в литии равна 19 мкм, частота ядерных реакций в таком слое составляет $7,1 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, из продуктов реакций около 10% достигает поверхности слоя. Вкладываемая в газ мощность составляет 50 мВт/см^3 для гелий-неоновой смеси и 100 мВт/см^3 для гелий-неон-ксеноновой смеси, что соответствует скорости образования электрон-ионных пар $7 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ для гелия и $2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ для смеси He-Ne-He. Для достижения сравнимой по интенсивности излучения атомов щелочного металла и буферного газа необходимо чтобы одна ядерная частица, вышедшая из слоя, создавала ≈ 105 ионов и возбужденных атомов лития. По-видимому, эмиссия ионов и возбужденных атомов с поверхности происходит не только при бомбардировке ядерными частицами, но и ионизованными или возбужденными частицами буферного газа.

Если в гелий-неоновой смеси интенсивность линий лития резко падает при температуре ниже 473 К, то в смеси He-Ne-Xe наблюдается заметное излучение до 423 К. Интенсивность линий ксенона в смеси He-Ne-Xe монотонно снижается на 15 – 25% с повышением температуры от 323 К до 523 К. Исключением является линия 828,0 нм перехода $6p[1/2]0-6s[3/2]1$, интенсивность которой в этом диапазоне температур уменьшается почти в три раза. Возможно, это связано с близостью $6p[1/2]0$ -уровня к $5d$ -уровням ксенона. Интенсивность линий неона в гелии заметно снижается при температурах от 323 К до 473 К, и восстанавливается при 523 К. По-видимому, это связано с поглощением неона литием и дегазацией или распылением лития при более высокой температуре.

Процессы излучения линий натрия аналогичны процессам в литии, причем давление насыщенных паров натрия в 10^6 раз больше, чем паров лития при одинаковой температуре. В натрии также заселяются d -уровни NaI, переходы с которых заселяют резонансные $3p$ -уровни. В калии зарегистрированы только резонансные линии атома калия, возможные переходы с $5s$ и $3d$ -уровней на $4p$ -уровень находятся за пределами спектральной области чувствительности установки.

Работа при температурах выше температуры плавления лития не повлияла на воспроизводимость спектров люминесценции в течение четырех пусков реактора длительностью по три часа.

Общий порядок и условия проведения реакторных экспериментов с литиевой КПС и парами металлов

В 2020 году была проведена серия реакторных экспериментов по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик ядерно-возбуждаемой плазмы с парами металлов (лития и кадмия).

Общий порядок проведения реакторных экспериментов соответствовал ранее разработанной и отработанной методике. Все реакторные эксперименты проводились при стационарном уровне тепловой мощности реактора ИВГ.1М – 6 МВт. Для выявления зависимости интенсивности излучения от потока тепловых нейтронов – варьировалось расположение экспериментальной ячейки облучательного устройства выше ЦАЗ реактора на 100 мм или 150 мм. Исследовались однокомпонентные инертные газы и их смеси в широком интервале температур (от 373 К до 793 К, с шагом нагрева экспериментальной ячейки АУ 50 К).

Всего было проведено две серии реакторных экспериментов:

- эксперименты с однокомпонентными газовыми средами;
- эксперименты с многокомпонентными газовыми средами.

Условия проведения реакторных экспериментов были следующие:

– исследуемые среды:

- 1) инертные газы – Ne, Ar, Kr, Xe;
- 2) смеси инертных газов – He-Kr, Ne-Kr, Ar-Kr, Ne-Xe, Ar-Xe, Kr-Xe, Ne-Ar-Kr и Ar-Kr-Xe;

– давление газовой среды в объеме АУ – от 35 кПа до 115 кПа;

– исследуемый интервал длин волн – от 200 нм до 980 нм;

– исследуемый температурный интервал – от 370 К до 793 К;

– плотность потока тепловых нейтронов – $1,4 \cdot 10^{14}$ н/см²·с (в ЦАЗ); 10^{14} н/см²·с (на высоте 100 мм от ЦАЗ); $5 \cdot 10^{13}$ н/см²·с (на высоте 150 мм от ЦАЗ).

В таблице 3.3 и 3.4 представлены основные параметры реакторных экспериментов с однокомпонентными и многокомпонентными газовыми средами соответственно. В результате проведенных экспериментов были получены новые данные по спектрально-люминесцентным характеристикам ядерно-возбуждаемой плазмы с парами металлов.

Таблица 3.3. Параметры реакторных экспериментов с однокомпонентными газовыми средами

Уровень тепловой мощности реактора ИВГ.1М, МВт (поток тепловых нейтронов, н/см ² ·с)	Газовая среда	Давление, кПа	Температура экспериментальной ячейки, К	Температура корпуса АУ, К
2 ($5 \cdot 10^{13}$)	Ne	от 87,06 до 98,93	от 385 до 720	от 320 до 590
2 ($5 \cdot 10^{13}$)	Ar	от 37,60 до 96,66	от 380 до 720	от 320 до 560
6 ($1,4 \cdot 10^{14}$)	Kr	от 41,20 до 11,73	от 430 до 720	350
4 (10^{14})	Xe	от 36,78 до 40,00	от 430 до 720	от 370 до 640

Таблица 3.4. Параметры реакторных экспериментов с многокомпонентными газовыми средами

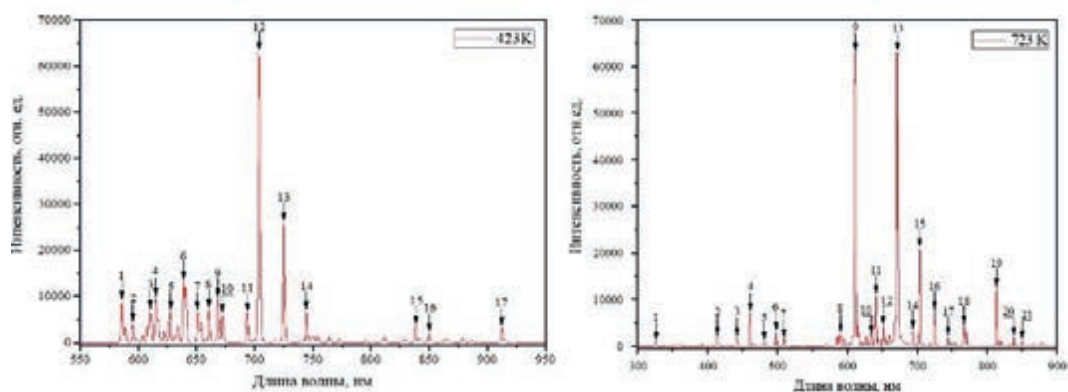
Расположение экспериментальной ячейки АУ относительно ЦАЗ реактора (поток тепловых нейтронов, н/см ² ·с)	Активная среда (соотношение)	Изменение давления в объеме АУ за время эксперимента, кПа	Температура экспериментальной ячейки, К	Температура корпуса АУ, К
0 мм ($1,4 \cdot 10^{14}$)	Ne (3 кПа) – Kr (97 кПа)	от 100,00 до 109,06	от 521 до 723	от 433 до 527
	Ne (97 кПа) – Xe (3 кПа)	от 96,66 до 107,99	от 400 до 737	от 373 до 581
+100 мм ($1,0 \cdot 10^{14}$)	Ar (90 кПа) – Xe (10 кПа)	от 100,00 до 106,06	от 413 до 523	от 328 до 413
	Kr (51 кПа) – Xe (51 кПа)	от 103,00 до 115,06	от 413 до 733	от 328 до 483
+150 мм ($0,5 \cdot 10^{14}$)	Ar (48 кПа) – Kr (48 кПа)	от 92,53 до 103,06	от 379 до 723	от 348 до 558
	Ne (90 кПа) – Kr (10 кПа)	от 100,00 до 105,06	от 423 до 723	от 343 до 495
	Ne (70 кПа) – Ar (20 кПа) – Kr (10 кПа)	от 100,00 до 107,06	от 383 до 723	от 366 до 513
	Ar (70 кПа) – Kr (20 кПа) – Xe (10 кПа)	от 100,00 до 104,93	от 391 до 785	от 344 до 512

Результаты реакторных экспериментов с однокомпонентными газовыми средами

На рисунке 3.23 представлены спектры люминесценции неона при времени интегрирования оптического спектрометра 0,03 с.

Из оптического спектра, представленного на рисунке 3.23а, можно увидеть, что спектры излучения неона, в основном, состоят из линий NeI, принадлежащих переходам 3p-3s [37] (2p-1s, в обозначениях Пашена [38]) атома неона, также в спектре присутствуют ряд линии 3d – 3p. Максимальные интенсивности имеют линии неона с длинами волн 585,2 нм; 614,3 нм; 638,2 нм; 703,2 нм и 724,5 нм.

Для идентификации основных линий и переходов (заселения и расселения различных уровней), происходящих в активной среде ядерно-возбуждаемой плазмы использовались источники [39 - 41].



- 1 – 585,2 нм; 2 – 594,4 нм; 3 – 609,6 нм;
 4 – 614,3 нм; 5 – 626,6 нм; 6 – 638,2 нм;
 7 – 650,6 нм; 8 – 659,8 нм; 9 – 667,8 нм;
 10 – 671,7 нм; 11 – 692,9; 12 – 703,2 нм;
 13 – 724,5 нм; 14 – 743,8 нм;
 15 – 837,7 нм; 16 – 849,6 нм; 17 – 912,2 нм

- 1 – 326,1 нм (Cd); 2 – 413,2 нм (Li);
 3 – 441,5 нм (Cd); 4 – 460,2 нм (Li);
 5 – 479,9 нм (Cd); 6 – 497,1 нм (Li);
 7 – 508,5 нм (Cd); 8 – 594,4 нм;
 9 – 610,3 нм (Li); 10 – 638,2 нм;
 11 – 640,2 нм; 12 – 650,6 нм;
 13 – 670,7 нм (Li); 14 – 692,9 нм;
 15 – 703,2 нм; 16 – 724,5 нм;
 17 – 748,8 нм; 18 – 769,8 нм (K);
 19 – 812,6 нм (Li); 20 – 837,7 нм,
 21 – 849,5 нм

а) температура ячейки АУ – 423 К

б) температура ячейки АУ – 723 К

Рисунок 3.23. Спектры люминесценции неона при различных температурах корпуса экспериментальной ячейки АУ

В спектрах инертных газов преобладают линии p-n-переходов (где n=3, 4, 5, 6, для неона, аргона, криптона, ксенона, соответственно).

Визуальное отображение пространственного распределения температуры по объему экспериментальной ячейки АУ на примере газа аргон приведено на рисунке 3.24. С использованием программного комплекса ANSYS Fluent v.14 было смоделировано

температурное поле экспериментальной ячейки АУ, при заданной мощности работы реактора ИВГ.1М, равной 6 МВт, и расходе азота равном 0,001 кг/с.

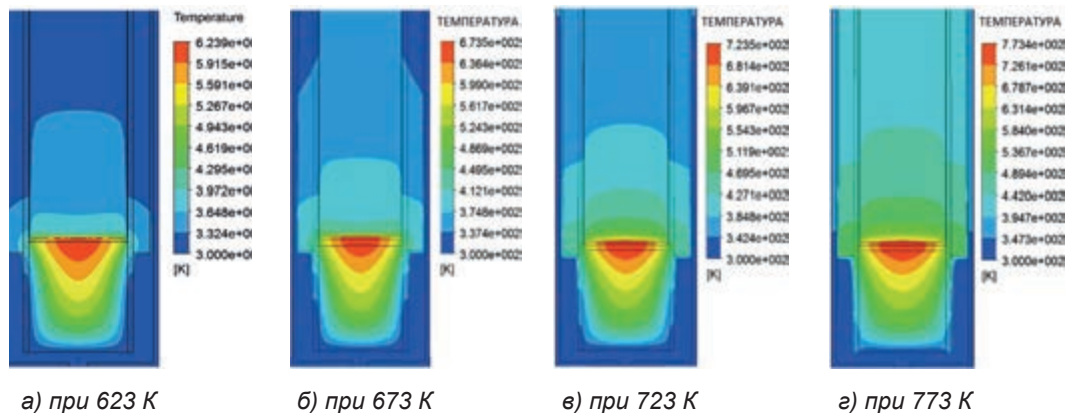


Рисунок 3.24. Пространственное распределение температуры по объему экспериментальной ячейки АУ на примере газа аргон

Эволюцию изменения спектрального состава с увеличением температуры литиевого слоя представлена на рисунке 3.25 на примере газа аргон.

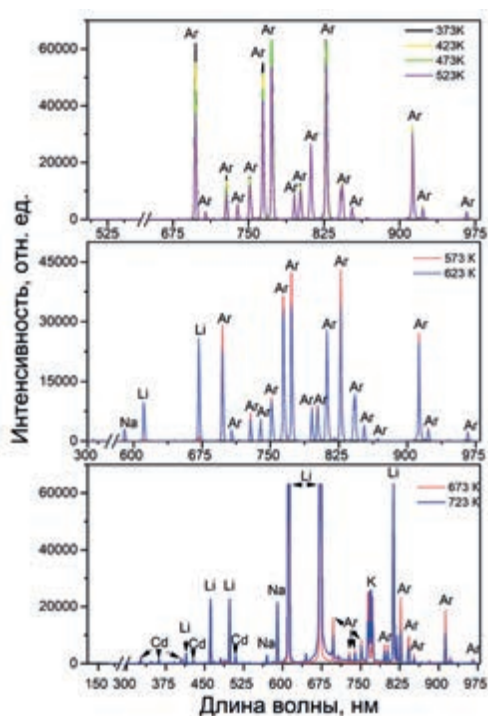


Рисунок 3.25. Спектр излучения аргона, $t=0,1$ с. Давление в объеме АУ при разных температурах литиевого слоя: при 373 К – 88,8 кПа, 423 К – 89,1 кПа, 473 К – 91,9 кПа, 523 К – 93,9 кПа, 573 К – 95,8 кПа, 623 К – 96,2 кПа, 673 К – 96,3 кПа, 723 К – 96,7 кПа

Результаты реакторных экспериментов с многокомпонентными газовыми средами

Атомарные спектры парных смесей инертных газов

На рисунке 3.26 представлен спектр излучения гелий-криптоновой смеси. Спектральный состав гелий-криптоновой смеси при температуре 521 К в ближнем ИК-диапазоне преимущественно состоит из атомарных линий криптона.

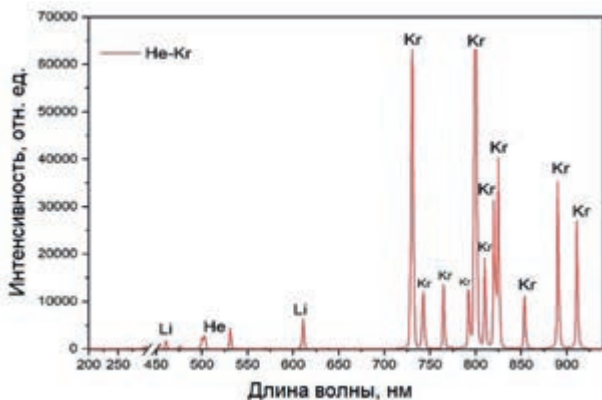


Рисунок 3.26. Спектр излучения He-Kr газовой смеси при температуре 521 К.
Время интегрирования: 100 мс

Для сравнения спектр излучения чистого криптона и гелий-криптоновой газовой смеси в диапазоне длин волн от 700 нм до 900 нм представлен на рисунке 3.27. В результате сравнения двух рисунков можно увидеть, что спектры излучения гелий-криптоновой смеси и чистого криптона практически идентичны и в основном, состоят из атомарных линий KrI, принадлежащих переходам $5p-5s$ атома криптона.

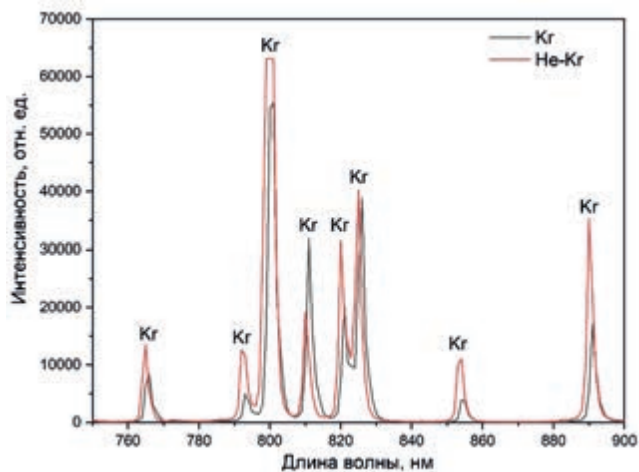


Рисунок 3.27. Спектр излучения чистого криптона и гелий-криптоновой газовой смеси при температуре 521 К. Время интегрирования: 100 мс

Температурная зависимость интенсивности излучения на линии атома криптона (760,1 нм) и щелочных металлов Li (460 нм), Na (589,6 нм) и Cd (508 нм) для He-Kr смеси показана на рисунках 3.28 и 3.29. Можно заметить, что интенсивность линий криптона в гелий-криптоновой смеси заметно снижается с увеличением температуры.

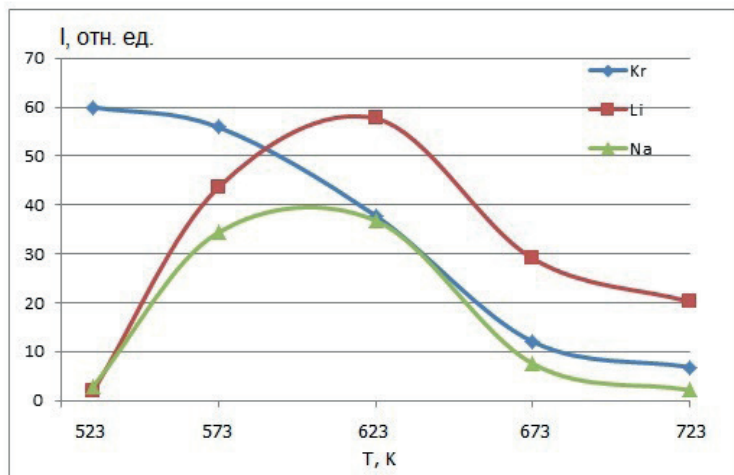
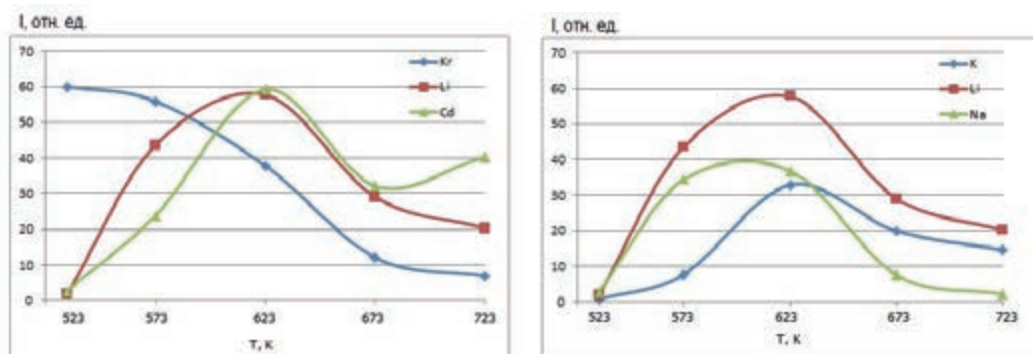


Рисунок 3.28. График температурной зависимости интенсивности излучения для характерных длин Kr, Li, Na в He-Kr смеси. Время интегрирования: Kr 760 нм – 0,1 с; Li 460 нм – 0,3 с; Na 589,6 нм – 0,1 с

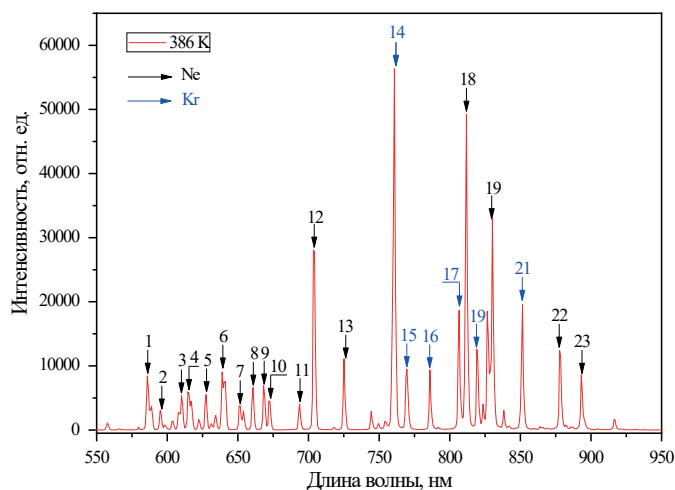


а) для характерных линий Kr, Li, Cd

б) для характерных линий K, Li, Na

Рисунок 3.29. График температурной зависимости интенсивности излучения для характерных длин волн в He-Kr смеси. Время интегрирования: Kr 760 нм – 0,1 с; Li 460 нм – 0,3 с; Na 589,6 нм – 0,1 с; Cd 508 нм – 3 с; K 405 нм – 0,3 с

На рисунке 3.30 (см. стр. 132) представлен спектр излучения неон-криптоновой смеси с учетом вычета фона при времени интегрирования равной 0,03 с.



1 – 585,2 нм (Ne); 2 – 594,4 нм (Ne); 3 – 610,1 нм (Ne); 4 – 614,3 нм (Ne);
 5 – 627,3 нм (Ne); 6 – 638,2 нм (Ne); 7 – 650,6 нм (Ne); 8 – 659,8 нм (Ne);
 9 – 667,8 нм (Ne); 10 – 671,7 нм (Ne); 11 – 692,9 нм (Ne); 12 – 703,2 нм (Ne);
 13 – 724,5 нм (Ne); 14 – 760,1 нм (Kr); 15 – 769,4 нм (Kr); 16 – 785,4 нм (Kr);
 17 – 805,9 нм (Kr); 18 – 810,4 нм (Kr); 19 – 819,0 нм (Kr); 20 – 829,8 нм (Kr);
 21 – 850,8 нм (Kr); 22 – 877,6 нм (Kr); 23 – 892,8 нм (Kr)

Рисунок 3.30. Спектры излучения Ne-Kr смеси при температуре корпуса экспериментальной ячейки АУ 386 К и при парциальном давлении 93,59 кПа

На рисунке 3.31 представлен спектр излучения неон-ксеноновой смеси с учетом вычета фона при времени интегрирования равной 0,1 с.

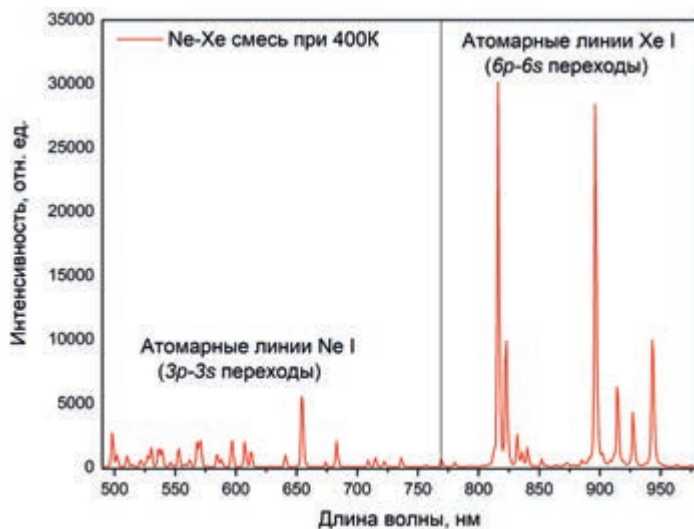
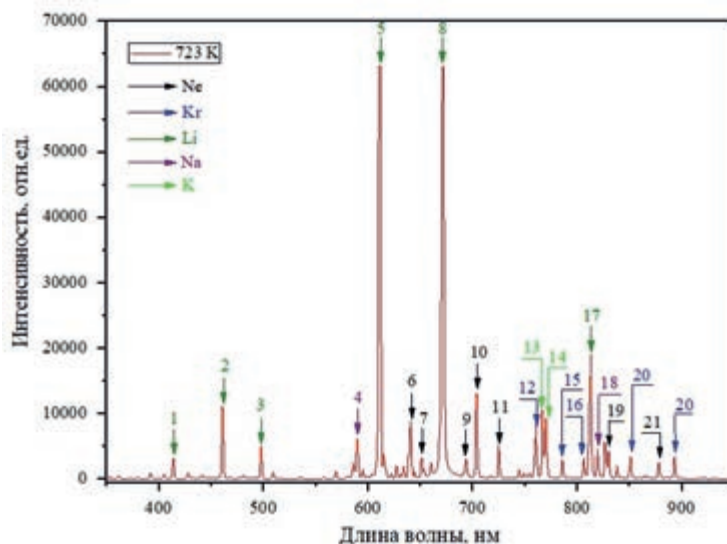


Рисунок 3.31. Спектры люминесценции Ne-Xe смеси при температуре корпуса экспериментальной ячейки АУ 400 К и при давлении 96,66 кПа

Начиная с температуры газовой смеси 523 К и выше в спектрах излучения парных смесей инертных газов (рисунок 3.32) наблюдаются линии атомов щелочных металлов и кадмия. Спектр излучения лития представлен длинами волн 391,9 нм; 413,2 нм; 460,2 нм; 497,1 нм; 610,3 нм; 670,7 нм; 812,6 нм. В спектре натрия высвечивались линии на 568,8 нм (4d-3p переход), 588,9 нм (3p-3s переход) и 819,4 нм (переход 3d-3p). В спектре калия присутствуют резонансные линии на 404,7 нм (переход 5p-4s), 766,4 нм (переход 4p-4s) и 769,8 нм (переход 4p-4s).

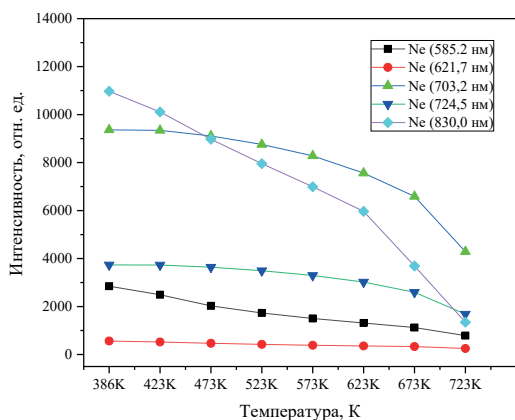


- 1 – 413,7 нм (Li); 2 – 460,2 нм (Li); 3 – 497,1 нм (Li); 4 – 588,9 нм (Na); 5 – 610,3 нм (Li);
 6 – 640,2 нм (Ne); 7 – 650,6 нм (Ne); 8 – 670,7 нм (Li); 9 – 692,9 нм (Ne);
 10 – 703,2 нм (Ne); 11 – 724,5 нм (Ne); 12 – 760,1 нм (Kr); 13 – 766,4 нм (K);
 14 – 769,8 нм (K); 15 – 785,4 нм (Kr); 16 – 805,9 нм (Kr); 17 – 812,6 нм (Li);
 18 – 819,4 нм (Na); 19 – 826,6 нм (Kr); 20 – 830,0 нм (Kr); 21 – 850,8 нм (Kr);
 22 – 878,0 нм (Kr); 23 – 892,8 нм (Kr)

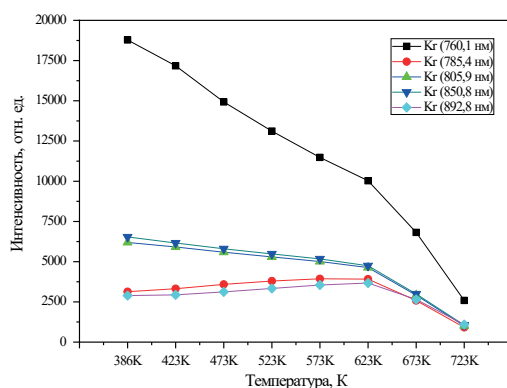
Рисунок 3.32. Спектры люминесценции неон-криптоновой смеси при температуре корпуса экспериментальной ячейки АУ 723 К и при давлении 105,06 кПа

В спектре наблюдались линии кадмия на длинах волн 326,1 нм (переход 5s-5p), 340,3 нм (переход 5d-5p), 361,0 нм (переход 5d-3p), 428,5 нм (переход 8s-6p), 441,5 нм (переход 5s2-5p), 467,8 нм (переход 6s-5p), 479,9 нм (переход 6s-5p) и 508,5 нм (переход 6s-5p).

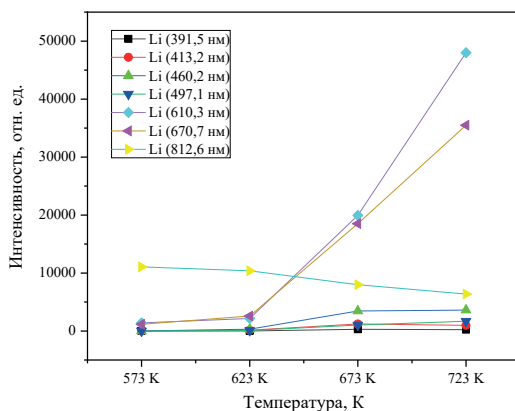
Графическое отображение распределения интенсивности излучения линий Ne, Kr, Li, Na, K и Cd в исследуемой газовой среде Ne-Kr можно увидеть на рисунке 3.33 (см. стр. 134) в виде графиков температурной зависимости.



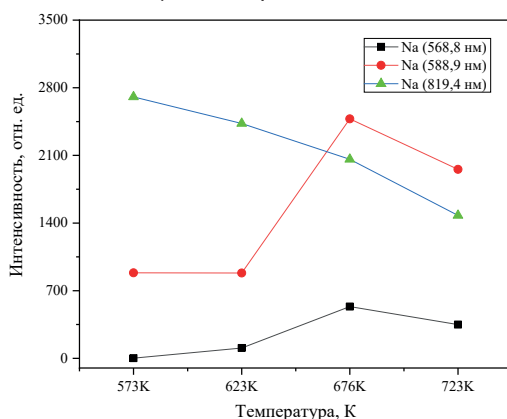
а) линии неона



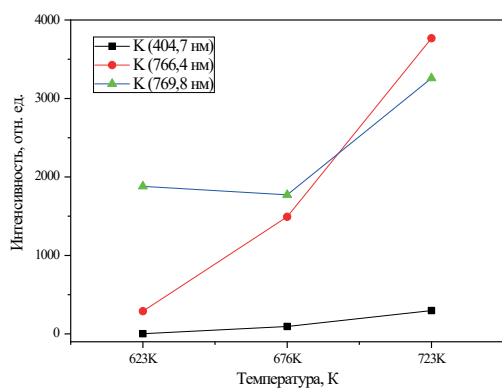
б) линии криптона



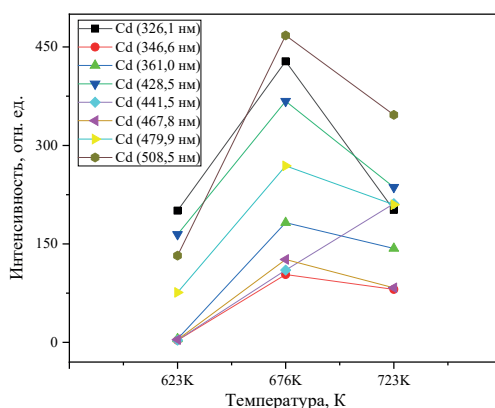
в) линии лития



г) линии натрия



д) линии калия



е) линии кадмия

Рисунок 3.33. График зависимости интенсивности излучения спектральных линий от температуры в Ne-Kr

Молекулярные спектры парных смесей инертных газов

Спектры излучения парных смесей инертных газов показаны на рисунке 3.34.

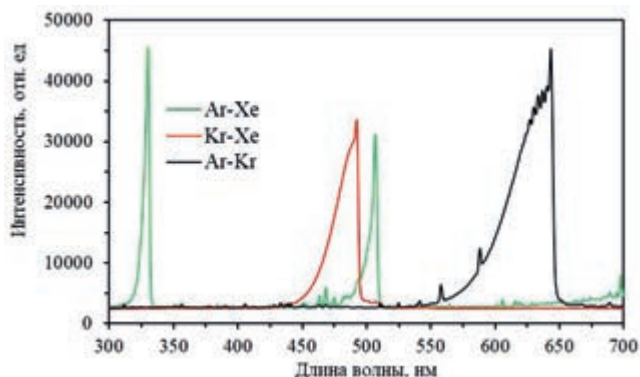


Рисунок 3.34. Спектр излучения газовых смесей при температуре 413 К.
Время интегрирования: Ar-Xe – 1 с; Kr-Xe – 100 мс; Ar-Kr – 3 с

Схематичное представление о потенциальных кривых молекулы ArXe^+ показано на рисунке 3.35.

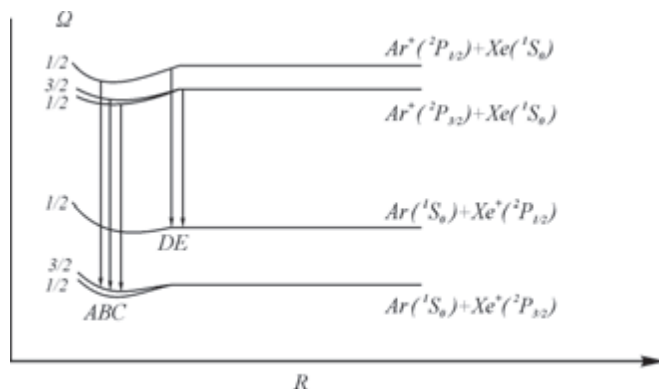
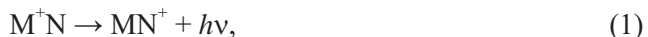


Рисунок 3.35. Иллюстративная схема потенциальных кривых молекулы $(\text{ArXe})^+$

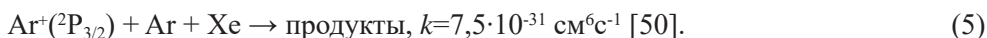
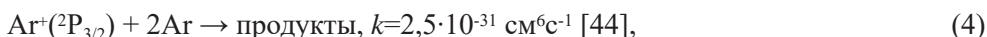
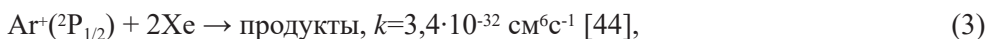
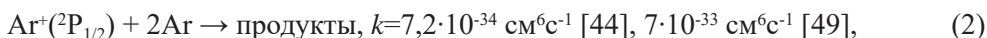
Молекулярные полосы, наблюдавшиеся в спектрах излучения парных смесей инертных газов, были идентифицированы как переходы между состояниями по формуле (1) гетероядерных ионных молекул



где молекулярные состояния M^+N асимптотически соответствуют состояниям $\text{M}^+ + \text{N}$, а MN^+ состояниям $\text{M} + \text{N}^+$; здесь M, N – атомы инертных газов, причем N – более тяжелый атом.

Максимумы полос гетероядерных ионных молекул расположены на длинах волн: 329 нм и 506 нм (Ar-Xe, полосы A и D), 491 нм (Kr-Xe, полоса A), 642 нм (Ar-Kr, полоса A). Подобные полосы ранее наблюдались при возбуждении электрон-

ным пучком смесей Ar-Xe, Ar-Kr, Kr-Xe [42,43], а также при возбуждении смесей (формулы (2) - (5)) продуктами распада изотопов [44 - 46]. При ионизирующей накачке, в отличие от случая возбуждения электрическим разрядом [47,48] наблюдались, только полосы А и D. Это связано с резким отличием констант скоростей процессов для состояний атомарного иона $M^+(^2P_{1/2})$ и $M^+(^2P_{3/2})$. Для смесей Ar-Xe и Ar-Kr константы скорости процессов, конкурирующих с процессом образования гетероядерных ионных молекул:



Интенсивность полос В, С, Е должна быть намного меньше интенсивности полос А, D. Наличие полос В, С, Е в [47,48], по-видимому, связано с невысоким давлением газовой смеси в этих работах, равным 35 Па [48] и 0,6–2 кПа [47]. При низком давлении смеси меньше сказывается различие в константах скоростей процессов с участием ионов $M+(^2P_{1/2})$ и $M+(^2P_{3/2})$.

Температурная зависимость интенсивности излучения в полосах гетероядерных ионных молекул показана на рисунке 3.36.

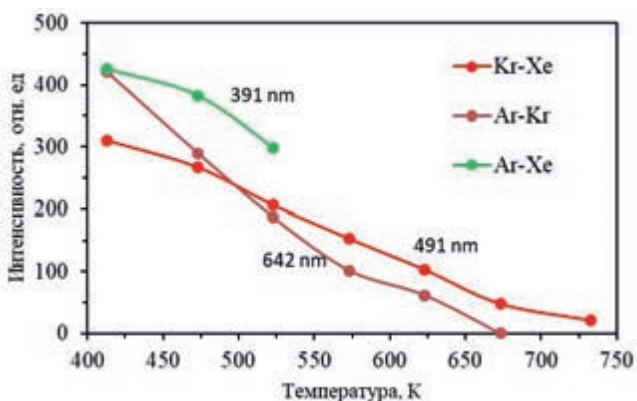


Рисунок 3.36. Зависимость интенсивности полос гетероядерных ионных молекул от температуры газовых смесей

Излучение на длине волны 642 нм смеси Ar-Kr пропадает при температуре 670 К, интенсивность излучения смеси Kr-Xe (максимум на длине волны 491 нм) монотонно уменьшается до температуры 730 К. Исходя из соотношения для температурной зависимости излучения была сделана оценка значения Q – энергии диссоциации гетероядерной молекулы в состоянии с $\Omega=1/2$ по формуле (6).

$$I \sim \exp\left(-\frac{Q}{kT}\right), \quad (6)$$

3.6 Анализ экспериментальных данных и систематизация полученных результатов работы

Заключительным этапом работ по настоящей теме был анализ полученных экспериментальных данных и обобщение полученных результатов.

При отсутствии газа в объеме АУ во время проведения измерений в реакторных экспериментах линии щелочных металлов отсутствовали (рисунок 3.37).

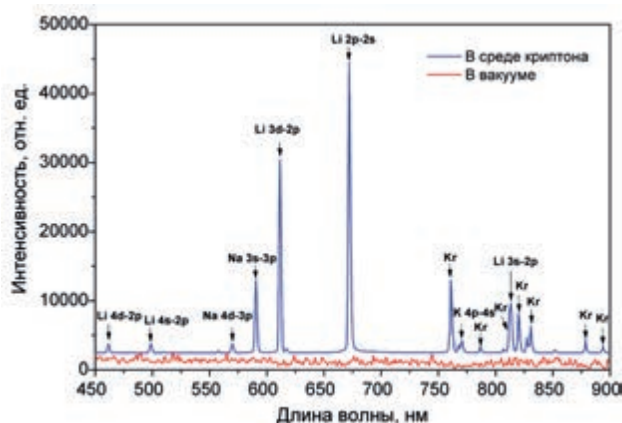


Рисунок 3.37. Спектр криптона при давлении 45 кПа (Kr) и излучения из камеры при остаточном давлении ~10 Па (в вакууме) в диапазоне от 450 нм до 900 нм.

Температура стенок экспериментальной ячейки 623 К.

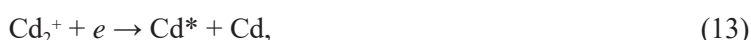
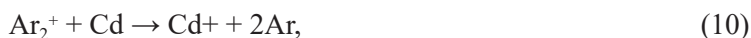
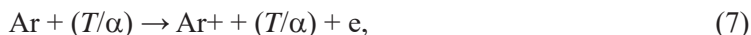
Время интегрирования спектра 0,01 с (Kr) и 10 с (в вакууме)

В спектре лития, кроме линий, указанных на рисунке, присутствуют также линии на длинах волн 413,3 нм (переход 5d-2p), 391,5 нм (6d-2p) и 379,5 нм (7d-2p). Излучение на резонансных линиях лития на 670,8 нм пленено и подвержено самопоглощению. Также пленено излучение на резонансных линиях натрия на 589 нм и 589,6 нм (переход 3p-3s), в спектре присутствуют также линии натрия 568,3 нм (4d-3p) и 819,5 нм (3d-3p). В спектре калия наблюдаются резонансные линии 766,5 нм и 769,9 нм (4p-4s), 404,4 нм и 404,7 нм (5p-4s). Натрий и калий содержатся в литии в виде примесей с долей 0,04% и 0,005%, соответственно.

Спектр атома кадмия представлен линиями триплета кадмия (467,8 нм; 480 нм; 508,6 нм), а также 326,1 нм; 361 нм и 643,8 нм. Линия иона кадмия 441,6 нм присутствует только в гелии и неоне, слабые линии 533,7 нм и 537,8 нм только в гелии.

Давление паров кадмия при температурах 623–723 К составляет 0,03–0,3 кПа. При температуре ячейки ниже 600 К, давление паров кадмия ниже 0,03 кПа. Возбуждение уровней атомов и ионов кадмия происходит в процессах передачи возбуждения от ионов и возбужденных атомов аргона (формулы (7) – (15)). Потенциал ионизации аргона 15,76 эВ, поэтому при передаче возбуждения от ионов аргона могут возбуждаться только резонансные $5p(^2P_{1/2, 3/2})$ уровни иона кадмия. Длины волн резонансных переходов CdII (214,4 нм и 226,5 нм) находятся за пределами спектральной области установки.

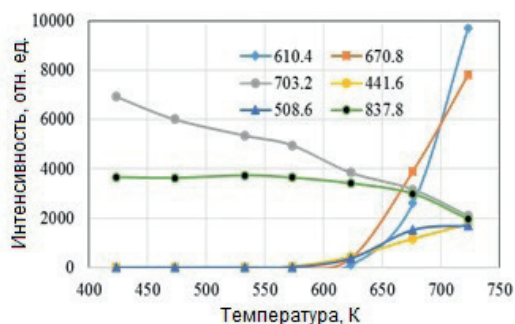
Основные процессы возбуждения атомов кадмия – перезарядка ионов аргона на атомах кадмия и процесс Пеннинга с участием возбужденных атомов аргона (N – третья частица):



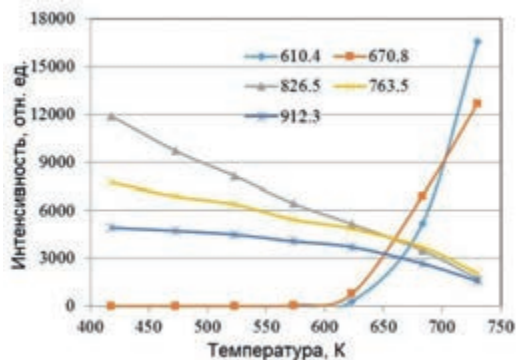
Снижение интенсивности линии 326,1 нм при температуре 723 К, по-видимому, связано с самопоглощением резонансной линии с увеличением плотности атомов кадмия.

Зависимости интенсивности характерных линий элементов от температуры слоя лития (стенок экспериментальной ячейки АУ) показаны на рисунке 3.38. Интенсивности приводятся в относительных единицах, без поправки на спектральную чувствительность установки. Для резонансных линий лития и натрия приведено пиковое значение интенсивности, без учета уширения линии вследствие самопоглощения. Начальное давление газа в объеме АУ при температуре стенок экспериментальной ячейки 420 К составляло для: Ne – 100 кПа, Ar – 88 кПа, Kr – 41 кПа, Xe – 37 кПа.

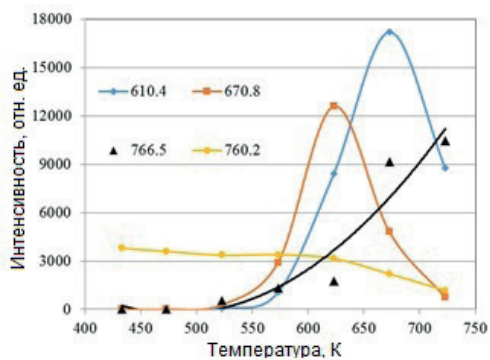
На графиках, представленных на рисунке 3.38 увеличена интенсивность для: линий 763,5 нм; 826,5 нм; 912,3 нм (рисунок 3.38б); 766,5 нм (рисунок 3.38в) и 590 нм; 766,5 нм (рисунок 3.38г) в 5 раз; для линий 441,6 нм; 837,8 нм (3d-3p переход) (рисунок 3.38а) в 10 раз.



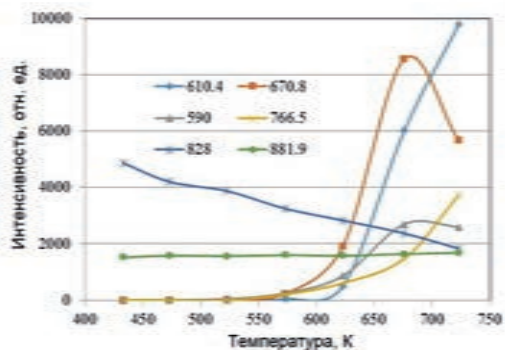
а) в неоне



б) в аргоне



в) в криптоне



г) в ксеноне

Рисунок 3.38. Зависимость интенсивности линий лития (610,4; 670,8 нм), натрия (590 нм), калия (766,5 нм), кадмия (441,6; 508,6 нм) и атомов инертных газов (Ne – 703,2 нм; 838,5 нм; Ar – 763,5 нм; 826,5 нм; 912,3нм; Kr – 760,3 нм; Xe – 828 нм) от температуры слоя лития в газовых средах: Ne, Ar, Kr, Xe

Как видно из рисунка 3.37, интенсивность линий лития и натрия при распылении в вакуум более чем в 10^4 раз меньше интенсивности линий при распылении в газовую среду. Особенностью распыления в газовую среду является резкий рост интенсивности линий щелочных металлов при температурах слоя лития выше 520 К в среде криптона, 570 К в среде ксенона и 620 К в среде аргона и неона. На рисунке 3.39 показана температурная зависимость интенсивности люминесценции лития в координатах $(1/kT, \ln I)$, где k – постоянная Больцмана, T – температура газа.

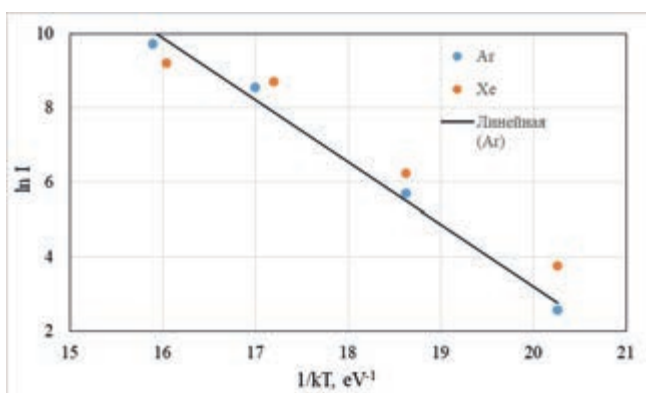


Рисунок 3.39. Зависимость интенсивности излучения лития на 610,4 нм в аргоне и ксеноне от обратного значения температуры слоя лития

Быстрый рост интенсивности люминесценции формула (16) хорошо аппроксимируется выражением

$$I \sim \exp(-A/kT), \quad (16)$$

где A – энергия активации данного процесса.

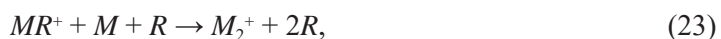
Для линии лития 610,4 нм получены следующие значения A : 1,67 эВ в среде Ar; 1,63 эВ в среде Ne и 1,61 эВ в среде Xe. Эти значения хорошо совпадают с энергией испарения (сублимации) лития равной 1,63 эВ (156,9 кДж/моль [48]) и резко отличаются от энергии активации при самодиффузии в литии (55,2 кДж/моль [51]). Поскольку давление насыщенных паров лития мало ($4 \cdot 10^{-6}$ Па при 520 К и 0,08 Па при 720 К [52]), процесс излучения не может быть связан с обычным термическим испарением лития [53].

Механизм выхода возбужденных атомов из кадмия изучен в работе [54]. Температурная зависимость интенсивности люминесценции объясняется на основе капельной модели. При торможении в металле ядерная частица выбивает некоторые из атомов кристаллической решетки в междоузлия, часть смещенных атомов может находиться в возбужденном состоянии. За счет кинетической энергии частицы происходит быстрый нагрев и выброс микрокапли разогретого металла. Смещенные атомы диффундируют внутри капли в поисках вакансий. При температурах кадмия от 430 К до 530 К коэффициент самодиффузии резко возрастает и это способствует выходу смещенных атомов из капли. Следует отметить, что температура металла в капле будет около или выше температуры плавления и слабо связана с начальной. По-видимому, следует рассматривать самодиффузию смещенных атомов из основного металла. Вывод о связи температурной зависимости интенсивности линий с самодиффузией атомов из металла был сделан на основе близости полученных значений энергий активации процесса излучения атомов и ионов металла к значениям энергии активации при самодиффузии Q . Для кадмия получено значение энергии активации A от 75 кДж/моль до 85 кДж/моль [55] при табличном значении Q от 76 кДж/моль до 80 кДж/моль [56], для цинка $A \sim 70$ кДж/моль [57] и $Q = 91,6$ кДж/моль [51]. Следует отметить, что полученные в [55, 57] значения A не сильно отличаются от значений энергии сублимации кадмия (99,57 кДж/моль [51]) и цинка (115,3 кДж/моль [51]), соответственно.

Некоторым отличием распыления в литии является, то что в случае облучения α -частицами [55] или продуктами ядерной реакции ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ [56] заряженная частица влетает в металл (кадмий или цинк), а при ядерной реакции ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ ионы вылетают непосредственно из слоя металла и, только часть частиц, достигшая противоположной стенки, влетает в металл. Другим отличием является нахождение лития в жидкой фазе, а кадмий облучался в твердом состоянии. Коэффициент распыления металлического кадмия α -частицами с энергией 5,3 МэВ возрастал с $4 \cdot 10^{-18}$ г/частицу при температуре 293 К (распыление в вакуум) до $\sim 3 \cdot 10^{-14}$ г/частицу при распылении в гелий при температуре кадмия 513 К [55]. Высокий коэффициент распыления соответствует выбросу около 10^8 атомов металла на одну альфа-частицу.

Таким образом, в области возбуждения газа создается плотность паров металла отличная от плотности насыщенного пара. Можно предполагать, что в литии заметная доля металла распыляется не только в виде микрокапель [55, 57], но и в виде отдельных нейтральных атомов. Непосредственный вклад вылетевших ионов и возбужденных атомов в излучение незначителен, об этом свидетельствует отсутствие заметного оптического излучения в вакууме при температуре слоя лития 350 К (рисунок 3.37).

Тогда схема возбуждения атомов формулы (17) – (25) лития или другого щелочного металла в инертном газе представляется следующей



где R – атом инертного газа;

M – атом металла.

Заселение уровней лития происходит в процессе (24) рекомбинации молекулярных ионов с электронами.

Как видно из рисунка 3.38, интенсивность линий np - ns -переходов инертных газов монотонно спадает с ростом температуры или практически не изменяется, как например, интенсивности переходов с $6p_6$ - $6p_{10}$ -уровней ксенона (линия 881,9 нм на рисунке 3.38). Отсутствует излом на кривых зависимости интенсивности линий np - ns -переходов атомов инертных газов от температуры в области возбуждения при резком возрастании интенсивности линий щелочных металлов. Заселение $2p$ -уровней лития практически не влияет на заселение np -уровней атомов инертных газов, в том числе каскадными переходами с более высоких уровней. Основными каналами заселения $2p$ -уровней инертных газов считаются каскадные переходы с d -уровней [58,59]. d -уровни заселяются в процессах диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов с электронами, а также при прямом возбуждении атомов вторичными электронами [58]. Основным каналом, приводящим к заселению $2p$ -уровней лития, по-видимому, является процесс Пеннинга (21). Процесс (20) является конкурирующим с процессом диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов инертных газов с электронами (24), приводящим к заселению уровней атомов инертных газов. Преобладание процесса (20) привело бы к спаду интенсивности np - ns -переходов инертных газов.

По-видимому, передача возбуждения от инертного газа атомам лития в процессе Пеннинга (21) или перезарядки (20) протекает в криптоне эффективнее, чем в аргоне и неоне, и в криптоне резкий рост интенсивности линий лития начинается при температуре на 100 К ниже, чем в аргоне и неоне. Наблюдавшийся спад интенсивности линии 610,4 нм в среде криптона при температуре слоя лития выше 670 К, по-видимому, связан с пленением излучения также и на этом переходе.

Ниже представлены результаты анализа температурной зависимости люминесценции в смесях $Kr(51 \text{ кПа})+Xe(51 \text{ кПа})$, $Ar(48 \text{ кПа})+Kr(48 \text{ кПа})$ и $Ar(90 \text{ кПа})+Xe(10 \text{ кПа})$, парциальное давление газа здесь приводится для температуры 410 К. В каждой смеси излучение происходит на $2p$ - $1s$ -переходах более легкого газа (рисунок 3.40 на стр. 142).

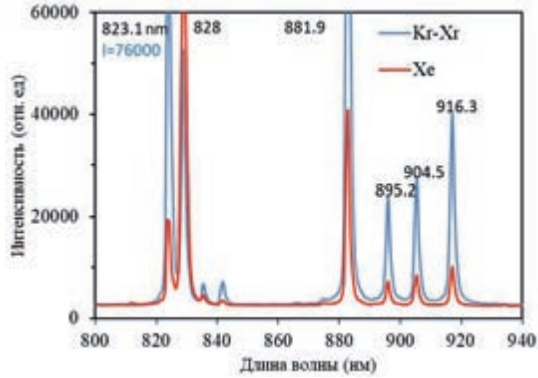
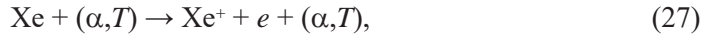
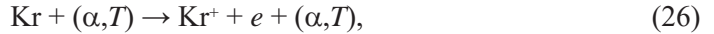


Рисунок 3.40. Спектр излучения ксенона (36 кПа) и смеси Кр-Хе при температуре 413 К, и потоке тепловых нейтронов 10^{14} н/см²с. Время интегрирования спектрометра: 300 мс (Кр-Хе), 75 мс (Хе)

При прохождении α -частиц и ядер трития через газовую среду образуются ионы и вторичные электроны, эти электроны также ионизируют и возбуждают атомы газа. Основные процессы (формулы (26) – (35)), приводящие к излучению линий инертного газа в смеси Кр-Хе (M – третья частица, атом криптона или ксенона)



В результате диссоциативной рекомбинации молекулярного иона инертного газа преимущественно образуются атомы в $3d$ и $2p$ состояниях [60], в результате переходов с $3d$ -уровней также заселяется $2p$ -уровни. Возможные переходы с более высоких уровней находятся за пределами области чувствительности спектрометра. Спектр излучения смеси Кр-Хе заметно отличается от спектра люминесценции чистого ксенона (рисунок 3.40). Это связано не только с некоторым отличием процессов заселения $2p$ -уровней ксенона, но с существенным отличием в значениях констант скорости тушения $2p$ -уровней ксенона атомами криптона и ксенона [46]. Особенно это заметно при сравнении интенсивности линий $2p_5$ и $2p_6$ уровней ксенона. Константа скорости тушения $2p_5$ -уровня ксенона криптоном составляет $13,2 \cdot 10^{-11}$ см³с⁻¹, тушения

ксеноном $0,59 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$. Уровень $2p_6$ наоборот, сильнее тушится ксеноном ($10,1 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$), чем криптоном ($2,8 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$).

При повышении температуры появляются линии лития, натрия и калия (рисунок 3.41).

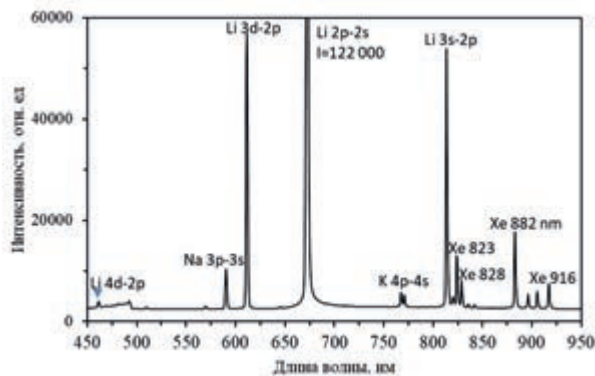


Рисунок 3.41. Спектр излучения смеси Кг-Хе при температуре 673 К, поток тепловых нейтронов равен $10^{14} \text{ н/см}^2\text{с}$. Время интегрирования 30 мс

Процессы возникновения излучения на линиях щелочных металлов в случае однокомпонентных инертных газов описаны в [61]. При вылете α -частиц и ядер трития из слоя лития образуются пары лития при парциальном давлении намного превышающем давление насыщенных паров. В результате плазмохимических процессов в газе образуются ионы лития, в основном, в результате процесса Пеннинга на атомах инертных газов в $1s$ -состояниях. Диссоциативная рекомбинация молекулярных ионов лития приводит к появлению линий атомов лития в спектре. Аналогичные процессы протекают с парами натрия и калия. Температурная зависимость интенсивности излучения на линиях атомов инертных газов и щелочных металлов показана на рисунках 3.42 и 3.43 (см. стр. 144) для смеси Кг-Хе и рисунке 3.44 (см. стр. 144) для смеси Ar-Кг.

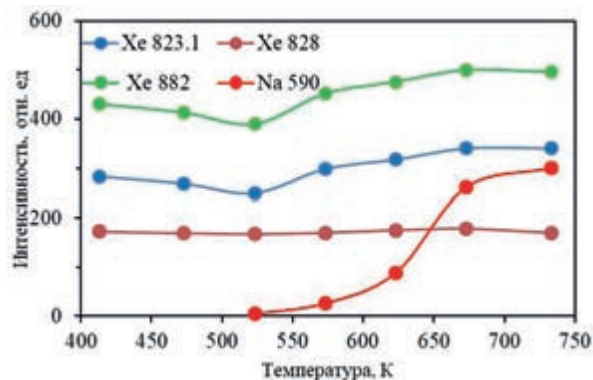


Рисунок 3.42. Зависимость интенсивности линий ксенона и натрия в смеси Кг-Хе от температуры литиевого слоя. Поток тепловых нейтронов $10^{14} \text{ н/см}^2\text{с}$

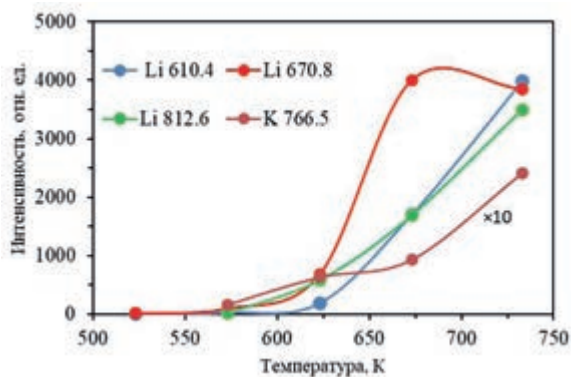


Рисунок 3.43. Зависимость интенсивности линий лития и калия в смеси Kr-Xe от температуры литиевого слоя. Поток тепловых нейтронов 10^{14} н/см²с, интенсивность линий калия увеличена в 10 раз

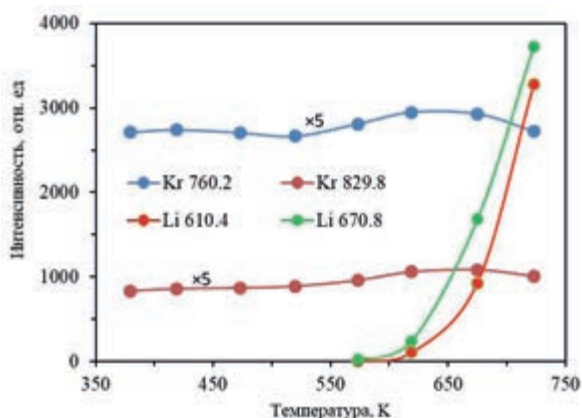


Рисунок 3.44. Зависимость интенсивности линий лития и калия в смеси Ar-Kr от температуры литиевого слоя. Поток тепловых нейтронов 10^{14} н/см²с, интенсивность линий калия увеличена в 5 раз

Интенсивность линий криптона и ксенона вначале снижается с температурой, также как и в случае однокомпонентных газов, затем при температурах выше 500 К снова возрастает. Увеличение интенсивностей линий Kr и Xe, по-видимому, связано с диссоциацией молекулярных ионов Ar^+Xe и Kr^+Xe , с участием образовавшихся ионов Ar^+ (Kr^+) в плазмохимических процессах в смеси. Также, как и в случае однокомпонентного инертного газа [61], возникновение интенсивного излучения атомов щелочных металлов практически не влияет на интенсивность линий $2p-1s$ -переходов более легкого инертного газа. Таким образом, основной канал передачи возбуждения атомам щелочных металлов – процесс Пеннинга на атомах инертных газов в $1s$ -состояниях.

Интенсивность линий лития и натрия резко возрастает при температуре литиевого слоя выше 600 К. Интенсивность резонансных линий лития (670,4 нм, две линии

не разрешаются спектрометром) и натрия (589,5 нм и 590,0 нм, также не разрешаются) начинает уменьшаться при температурах выше 670 К. Это связано с пленением излучения на резонансных переходах. Резкий рост интенсивности линии лития 610,4 нм с повышением температуры (рисунок 3.44) удовлетворительно описывается соотношением по формуле (36):

$$I \sim \exp\left(-\frac{A}{kT}\right), \quad (36)$$

где k – постоянная Больцмана;

A – энергия активации процесса излучения.

Из наклона прямой в координатах $(\ln I, 1/kT)$ получено значение $A \approx 1,3$ эВ, что удовлетворительно согласуется с величиной энергии испарения лития 1,63 эВ (156,9 кДж/моль [48]), а также величиной, полученной с однокомпонентными инертными газами 1,61–1,67 эВ [61].

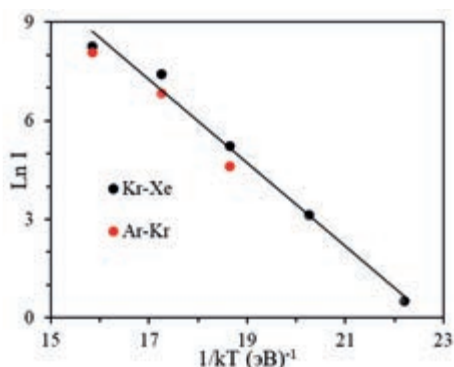


Рисунок 3.45. Зависимость интенсивности линии лития 610,4 нм в смесях Kr-Xe и Ar-Kr от обратной температуры литиевого слоя

Таким образом, появление линий щелочных металлов связано с испарением при вылете α -частиц и ядер трития из нанесенного литиевого слоя также, как и в случае однокомпонентных инертных газов.

Заключение

В рамках первого этапа (2018 г.) «Создание методической и аппаратной базы для проведения реакторных экспериментов по исследованию процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения» настоящей темы «Исследование процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения» были выполнены следующие работы:

- составлен литературный обзор открытых публикаций по экспериментальным исследованиям ядерно-возбуждаемой плазмы моно- и многокомпонентных газов, в условиях реакторного излучения. По результатам проведенного литературного обзора определены основные требования к экспериментальным методам и технике внутриреакторных экспериментов по исследованию люми-

несценции многокомпонентных газовых смесей, возбуждаемых продуктами ядерных реакций;

- разработана схема проведения реакторных экспериментов по исследованию ядерно-возбуждаемой люминесценции газовых сред в условиях работы стационарного ядерного реактора ИВГ.1М;
- проведена модернизация газо-вакуумной и информационно-измерительной системы экспериментального стенда ЛИАНА для проведения экспериментов по исследованию процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения;
- на основании выполненных конструкторских разработок и чертежей были изготовлены комплектующие детали и проведена сборка облучательного АУ с литиевой ячейкой для проведения реакторных экспериментов по исследованию спектрально-люминесцентных характеристик многокомпонентных газовых сред, возбуждаемых продуктами ядерной реакции ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ [8].

В рамках второго этапа (2019) «Проведение реакторных экспериментов по исследованию оптического излучения многокомпонентных газовых смесей» настоящей темы были проведены работы по подготовке экспериментального стенда ЛИАНА и облучательного АУ к экспериментам на реакторе ИВГ.1М. Проведен нейтронно-физический расчет по определению скорости (n,α) -реакций на ядрах ${}^6\text{Li}$ в слое лития с использованием программы MCNP5. Проведена оценка удельного энерговыделения основных элементов конструкции экспериментальной ячейки АУ в условиях реакторного излучения. С использованием программного комплекса ANSYS Fluent v.14 проведен теплофизический расчет облучательного АУ, в результате которого выбран минимальный расход азота, подаваемый в систему охлаждения АУ. В ходе проведения методического реакторного эксперимента отработаны режимы откачки, напуски газов и режимы охлаждения корпуса экспериментальной ячейки АУ. Проведены серии реакторных экспериментов с многокомпонентными газовыми и парогазовыми смесями, возбуждаемых продуктами ядерной реакции ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$, в результате которых были получены новые данные по спектрально-люминесцентным характеристикам ядерно-возбуждаемой плазмы инертных газов с парами щелочных металлов, идентифицированы основные линии и переходы ядерно-возбуждаемой плазмы. Разработана конструкция нового облучательного АУ для проведения реакторных экспериментов по изучению спектрально-люминесцентных характеристик газовых смесей с парами металлов в широком диапазоне температур.

Анализ полученных результатов показал, что с повышением температуры газовой смеси в спектре излучения появляются линии атомов щелочных металлов. Наличие в спектре этих линий связано с распылением слоя лития продуктами ядерной реакции, а также с бомбардировкой поверхности лития ионизованными и возбужденными частицами буферного газа.

В ходе выполнения заключительного этапа (2020 г.) НИР были выполнены следующие работы:

- изготовлено новое облучательное АУ для проведения реакторных экспериментов по изучению спектрально-люминесцентных характеристик газовых смесей с парами металлов в широком диапазоне температур;

- выработаны методические рекомендации [62] по проведению экспериментов по исследованию оптического излучения газовых смесей с парами металлов;
- на исследовательском ядерном реакторе ИВГ.1М проведены серии реакторных экспериментов с одно и многокомпонентными инертными газовыми средами в широком температурном диапазоне, в процессе которых были получены новые данные по спектрально-люминесцентным характеристикам ядерно-возбуждаемой плазмы с парами металлов;
- проведена обработка экспериментальных данных, отождествлены основные линии и переходы ядерно-возбуждаемой плазмы инертных газов с парами металлов, полученные в реакторных экспериментах.

Результаты реакторных экспериментов показали, что при температурах выше 550 К происходит интенсивное излучения лития, выделяющегося при вылете продуктов ядерной реакции ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ из литиевого слоя. Возбуждение атомов лития происходит преимущественно в результате процесса Пеннинга атомов лития на атомах инертных газов в 1s-состояниях и последующих ионно-молекулярных реакциях и не влияет на интенсивность излучения на 2p-1s-переходах атомов инертных газов. Одновременное излучение на переходах атомов инертных газов и лития, гетероядерных ионных молекул инертных газов позволяет увеличить эффективность прямого преобразования ядерной энергии в световую.

Оптимальными для достижения максимальной эффективности преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения являются смеси газов Kr-Xe, Ar-Xe, Ar-Kr.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ К ГЛАВЕ 3

1. S.P. Mel'nikov, A.A. Sinyanskii, A.N. Sizov, G.H. Miley, *Lasers with Nuclear Pumping*. Springer, New York, NY, USA, 2015, p. 455.
2. Батырбеков, Э.Г. Ядерно-оптические преобразователи. Лазеры с прямой ядерной накачкой / Э.Г. Батырбеков // Журн. Вестник НЯЦ РК.– 2008.– № 3.– С. 5-17.
3. Батырбеков, Э.Г. Ядерно-оптические преобразователи. Ядерно-возбуждаемые источники спонтанного излучения / Э.Г. Батырбеков // Журн. Вестник НЯЦ РК.– 2008.– № 4.– С. 72-80.
4. Sinyanskii, A.A. Development of continuous nuclear-laser setups in VNIIEF / A.A. Sinyanskii, S.P. Melnikov.– Proc. SPIE, 1999.– Vol.3686.– P. 43-55.
5. Apruzzese, G.M. Spectroscopic measurements for deuterium retention and lithium influx studies with lithium limiter on FTU/ G.M. Apruzzese, [et al.] // Nuclear materials and energy 12(2017).– 1214-1218 p.
6. М.У. Хасенов Ядерно-возбуждаемая плазма газовых смесей и лазеры с ядерной накачкой: Монография. Алматы, 2011. – 187 с.
7. Мельников, С.П. Лазеры с ядерной накачкой / С.П. Мельников, А.Н. Сизов, А.А. Сиянский.– Саров: ФГУП «РФЯЦ–ВНИИЭФ», 2008.– 440 с.

8. Исследование процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения: отчет НИР (промежуточный) // Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; рук. Ю.Н. Гордиенко.– Курчатов, 2018.– 52 с.– Инв. № 0218 РК 00292.
9. Исследование процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения: отчет НИР (промежуточный) // Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; рук. Ю.Н. Гордиенко.– Курчатов, 2019.– 56 с.– Инв. № 0219РК00328.
10. Миськевич А.И. Прямое преобразование ядерной энергии в световое и лазерное излучение: Учебное пособие. М.: НИЯУ МИФИ, 2011.– 164 с.
11. Батырбеков, Э.Г. Ядерно-возбуждаемые источники оптического излучения / Э.Г. Батырбеков.– Алматы, 2008.– 234 с.
12. Гришин, В.К. Свойства лития / В.К. Гришин, М.Г. Глазунов, А.Г. Аракелов [и др.]– М. : Металлургиздат, 1963.
13. Субботин, В.И. Физико-химические основы применения жидкометаллических теплоносителей / В.И. Субботин, М.Н. Ивановский, М.Н. Арнольдов.– М.: Атомиздат, 1970.
14. Параметры атомов и атомных ионов: справочник / А.А. Радциг, Б.М. Смирнов.– М.: Энергоатомиздат, 1986.– 344 с.
15. Ihle, H. Chemical thermodynamics of fusion reactor breeding materials and their interaction with tritium // *J. Nucl. Mater.*– 130 (1985).– P. 454-464.
16. Maroni, V.A. A review of the chemical, physical and thermal properties of lithium that are related to its use in fusion reactors / V.A. Maroni, E.J. Cairns, F. Cafasso // *Rep. ANL-8001.*– 1973.
17. Грязнов, Г.М. Материаловедение жидкометаллических систем термоядерных реакторов / Г.М. Грязнов, В.А. Евтихин, И.Е. Люблинский [и др.]– М. : Энергоатомиздат, 1989.
18. Apruzzese, G.M. Spectroscopic measurements of lithium influx from an actively water-cooled liquid lithium limiter on FTU / G.M. Apruzzese [et al.] // *Fusion Engineering and Design.*–2017.– Vol.117.– P. 145-149.
19. Поток нейтронов и гамма излучения в полости ФКЭ ИВГ.1М : техническая справка Филиал РГП ИАЭ НЯЦ РК: А.В. Пахниц;– Курчатов, 2018.– С. 6.
20. Gordienko, Yu.N. Experimental facility for reactor experiments on study of spectral-luminescent characteristics of nuclear-excited plasma / E.G. Bатырбеков, М.К. Skakov, T.V. Kulsartov, Zh.A. Zaurbekova, Ye.Yu. Tulubayev // *Journal of Physics.*– 2016.– Vol. 747, № 1. doi:10.1088/1742-6596/747/1/012012.– Thomson Reuters, Web of Science, Scopus.
21. Kulsartov, T.V. Studies of reactor irradiation effect on hydrogen isotope release from vanadium alloy V4Cr4Ti / T.V. Kulsartov, I.L. Tazhibaeva, V.P. Shestakov // *Journal of the Nuclear Materials.* – 2007. – Vol. 367-370, №2. – Pp. 844-847.
22. Sadvakassova, A.O. Research of Reactor Radiation Influence upon Processes of Hydrogen Isotopes Interaction with Materials of the Fusion Facility/ A.O. Sadvakassova, T.V. Kulsartov, I.L. Tazhibaeva, E.A. Kenzhin // *Fusion Science and Technology.* – 2011. – Vol. 60. – №1Т. – Pp. 9-15.

23. Tazhibayeva, I. Temperature Dependence of Rate Constant of Hydrogen Isotopes Interaction with Lithium Capillary-Porous System under Reactor Irradiation / I. Tazhibayeva, T. Kulsartov, Yu. Gordienko, A. Mukanova, Yu. Ponkratov, N. Barsukov, E. Tulubaev, E. Platadis, E. Kenzhin // *Fusion Engineering and Design*.– 2013.– Vol. 88, Issues 9–10.– P. 1731-1734.
24. Interaction of tritium and helium with lead–lithium eutectic under reactor irradiation / I. Tazhibayeva, T. Kulsartov, N. Barsukov, Y. Gordienko, Y. Ponkratov, Z. Zaurbekova, E. Tulubayev, V. Gnyrya, V. Baklanov, E. Kenzhin // *Fusion Engineering and Design*.– 2014.– Vol. 89, Issues 7–8.– P. 1486-1490.
25. Гордиенко Ю.Н. Применение метода водородопроницаемости в реакторных экспериментах по исследованию взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами / Гордиенко Ю.Н., Кульсартов Т.В., Понкратов Ю.Н., Гныря В.С., Никитенков Н.Н. // *Известия Томского Политехнического Университета*, Выпуск 2, Том 324, 2014, с. 149-162.
26. Применение метода водородопроницаемости в реакторных экспериментах по исследованию взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами / Ю.Н. Гордиенко [и др.] // *Известия Томского Политехнического Университета*.– 2014.– Вып. 2, Т. 324.– 149-162 с.
27. Batyrbekov, E.G., Yu.N. Gordienko, N.I. Barsukov, I.L. Tazhibayeva, Yu.V. Ponkratov, T.V. Kulsartov, M.U. Khassenov, Zh.A. Zaurbekova, Ye.Yu. Tulubayev, M.K. Skakov. Development of the reactor lithium ampoule device for research of spectral-luminescent characteristics of nuclear-excited plasma // *Fusion Engineering and Design*.– 2017.– Vol. 117.– P. 204-207.
28. Batyrbekov, E.G. Reactor experiments to study luminescence of He-Ne and He-Kr gaseous mixtures, excited by the products of $6\text{Li}(n,\alpha)3\text{H}$ nuclear reaction / E.G. Batyrbekov, Yu.N. Gordienko, N.I. Barsukov, Yu.V. Ponkratov, T.V. Kulsartov, M.U. Khassenov, Zh.A. Zaurbekova, Ye.Yu. Tulubayev, K.K. Samarkhanov // *Proc. of SPIE*.–2018.– Vol. 10614.
29. Исследование процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения: отчет НИР (промежуточный) / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; рук. Ю.Н. Гордиенко.– Курчатов, 2018.– 52 с.– Инв. № 0218 РК 00292.
30. Gordienko, Yu.N. Experimental facility for reactor experiments on study of spectral-luminescent characteristics of nuclear-excited plasma / E.G. Batyrbekov, M.K. Skakov, T.V. Kulsartov, Zh.A. Zaurbekova, Ye.Yu. Tulubayev // *Journal of Physics*. V. 747, №1, 2016.– doi:10.1088/1742-6596/747/1/012012.– Thomson Reuters, Web of Science, Scopus.
31. Акт об изготовлении комплектующих облучательного ампульного устройства для проведения реакторных экспериментов с парами металлов: акт // Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; исп. К.К. Самарханов.– Курчатов, 2020.– 2 с.– №12-230-02/32а от 13.02.2020.

32. Акт о сборке облучательного ампульного устройства (АУ) для проведения реакторных экспериментов с парами металлов: акт // Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; исп. К.К. Самарханов.– Курчатов, 2020.– 4 с.– №12-230-02/62 от 16.03.2020.
33. ГОСТ 8774-75. Литий. Технические условия.
34. Протокол эксперимента по нанесению лития на внутреннюю поверхность экспериментальной ячейки ампульного устройства: протокол // Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; исп. К.К. Самарханов.– Курчатов, 2018.– 11 с.– №12-230-02/122 от 07.06.2019.
35. Study of Luminescence in Noble Gases and Binary Kr-Xe Mixture Excited by the Products of ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ Nuclear Reaction / K. Samarkhanov, E. Batyrbekov, M. Khasenov, Y. Gordienko, Z. Zaurbekova, V. Bochkov // Eurasian Chem. Tech. J.– 2019.– Vol. 21.– P.115-123. (IF=0.52 БД Scopus, 2018).
36. Luminescence of nuclear-induced rare-gas plasmas in near infrared spectral range / A.A. Abramov [et al.] // Proc. of SPIE. 2006.– Vol. 6263.– P. 279-296.
37. Таблицы физических величин: справочник / И.К. Кикоин.– Атомиздат, Москва: 1976.– С. 1008.
38. Leon J. Radziemski. Spectroscopic notation for the energy levels of helium and neon // Optics News.– 1989.– Vol. 15, Issue 1.– P. 15-16.
39. Стриганов А.Р., Свинтицкий Н.С. Таблицы спектральных линий нейтральных и ионизованных атомов: справочник.– Москва: Атомиздат, 1966.– 893 с.
40. Гейдон А., Пирс Р. Отождествление молекулярных спектров.– М.: Изд. иностр. лит., 1949.– 540 с.
41. NIST DataBase. – URL: www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database
42. Kugler E. Über die Lumineszenze der Edelgasgemische Ar/Xe, Kr/Xe, Ar/Kr und der Gemische Xe/N₂ und Kr/N₂ bei Angerung mit schnellen Elektronen // Annalen der Physik.– 1964.– Vol.469.– P. 137-146.
43. Luches A., Perrone A., and Zecca A. Electron-beam-induced emission of KrXe⁺ // Optics Communications. 1983.– Vol.47.– P. 199-201.
44. Millet P., Barrie A. M., Birot A., Brunet H., Dijols H., Galy G., and Salamero J. Kinetic study of (ArKr)⁺ and (ArXe)⁺ heteronuclear ion emissions // Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics. 1981.– Vol.14.– P. 459-472.
45. Batyrbekov G.A., Batyrbekov E.G., Tleuzhanov A.B., Khasenov M.U. Molecular band in an emission spectrum of Ar-Xe // Optics and Spectroscopy (Sov. J.).– 1987.– Vol.62.– P. 212-214.
46. Whitehead C.A., Pournasr H., Bruce M.R., Cai H., Kohel J., Layne W.B., Keto J.W., Deactivation of two-photon excited Xe(5p56p, 6p', 7p) and Kr(4p55p) in xenon and krypton // Journal of Chemical Physics.– 1995.– Vol.102.– P. 965-1980.
47. Tanaka Y., Yoshino K., and Freeman D.E. Emission spectra of heteronuclear diatomic rare gas positive ions // Journal of Chemical Physics. 1975.– Vol. 62.– P. 4484-4496. Henriquesa D., Motalova V., Benczea L., and Markus T. Experimental thermodynamics of new electrode materials for Li-ion batteries // ECS Transactions.– 2013.– Vol. 46.– P. 303-312.

48. Millet P., Birot A., Brunet H., Espagnan M., Galy J., and Salamero Y. Kinetic study of the KrXe^+ heteronuclear ion emission // *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*.– 1983.– Vol. 16.– P. 1383-1392.
49. Tsuji M., Tanaka M. and Nishimura Y. New emission spectra of KrXe^+ produced from Kr afterglow reactions of Xe // *Chemical Physics Letters*.– 1996.– Vol. 262.– P. 349-354.
50. Grigor'ev I.S., Meilikhov E.Z. (Eds). *Handbook of Physical Quantities*.– Moscow: Energoatomizdat, 1991.
51. Lide D. R. *CRC Handbook of Chemistry and Physics, the 84th Edition*.– CRC Press, 2003-2004.
52. Gordienko Yu.N., Khasenov M.U., Batyrbekov E.G., Samarkhanov K.K., Ponkratov Yu.V., Amrenov A.K. Emission of noble gases and their mixtures with lithium excited by products of ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ nuclear reaction // *Laser and Particle Beams*.– 2019.– Vol. 37.– P. 18-24.
53. Kelly R. Statistical model for the formation of excited atoms in the sputtering process // *Phys. Rev. B*.– 1982.– Vol. 25.– P. 700-712.
54. Mis'kevich A.I. Lasing on the $5s^2 2D5/2 \rightarrow 5p 2P3/2$ Cd II ion transition upon sputtering of metal cadmium by nuclear particles // *Quantum Electronics*.– 2002.– Vol. 32.– P. 803-808.
55. Mis'kevich A.I., Tao Liu Kinetics of luminescence induced by sputtering metallic cadmium by a pulsed fast electron beam in helium // *Technical Physics*. 2010.– Vol. 55.– P. 264-269.
56. Mis'kevich A.I., Tao Lui. Temperature characteristics of luminescence of ${}^3\text{He-Zn}$ high-pressure plasma under nuclear pumping // *Optics and Spectroscopy*.– Vol. 105.– P. 691–698.
57. Khasenov M.U. Mechanisms of level population in gas lasers pumped by ionizing radiation // *Laser and Particle Beams*. 2014.– Vol. 32.– P. 501-508.
58. Khasenov M.U. Emission spectra of noble gases and their mixtures under ion beam excitation // *Laser and Particle Beams*. 2016.– Vol. 34.– P. 655-662.
59. Hu H.K., Mitchel G.B.A., Lipson R.H. Resonance-enhanced multiphoton-ionization–photoelectron study of the dissociative recombination and associative ionization of Xe_2^+ // *Physical Review A*.– 2000.– Vol. 62.– P 12-17.
60. Batyrbekov E., Khasenov M., Gordienko Yu., Samarkhanov K., Ponkratov Yu. Optical radiation from the sputtered species under gas excitation by the products of the ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ nuclear reaction // *Journal of Luminescence*.– 2020.– Vol. 220.
61. Методические рекомендации по проведению экспериментов по исследованию оптического излучения газовых смесей с парами металлов: методические рекомендации // Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; исп. К.К. Самарханов.– Курчатов, 2020.– 18 с.– №12-230-02/142 вн. от 25.08.2020.

Г Л А В А 4

ИССЛЕДОВАНИЯ ДЕГРАДАЦИИ СТРУКТУРЫ И СВОЙСТВ МАТЕРИАЛОВ ШТАТНЫХ ОТВС РЕАКТОРА БН-350 В РЕЗУЛЬТАТЕ ОБЛУЧЕНИЯ И ДЛИТЕЛЬНОГО ИЗОТЕРМИЧЕСКОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ

Сапатаев Е.Е., Кожаметов Е.А., Коянбаев Е.Т.

Введение

В настоящее время в мире большинство ядерных реакторов эксплуатируются уже более 30 лет. Продолжение безопасной эксплуатации зависит, среди прочего, от надежности основных компонентов реактора: корпуса реактора, активной зоны, технологических каналов и пр. Поведение конструкционных материалов эксплуатируемых и проектируемых ядерных реакторов определяет, в значительной степени, безопасную и экономичную работу атомных станций. Достижение высоких выгораний топлива ограничивается радиационной стойкостью материалов оболочек и чехлов ТВС, а срок безопасного длительного хранения ядерного топлива лимитируется коррозионной стойкостью барьерных материалов ТВС.

Роль конструкционных материалов состоит не только в обеспечении их стабильности на весь период эксплуатации тепловыделяющих сборок, но и в удержании внутри твэла продуктов деления топлива во время длительного «мокрого» или «сухого» хранения ОТВС. По существу, радиационная и коррозионная стойкость конструкционных материалов являются основными факторами в решении ключевых вопросов безопасности реакторной установки.

В соответствии с Постановлением Правительства Республики Казахстан №456 от 22 апреля 1999 года РУ БН-350 должна быть приведена в состояние безопасного хранения на срок 50 лет с последующим демонтажом и захоронением. В настоящее время топливные сборки упакованы в чехлы, изготовленные по технологии ANL (США), и размещены на длительное контейнерное сухое хранение на площадке КИР «Байкал-1». Технология сухого хранения сборок в среде аргона допускает наличие влажности, не превышающей 10%. Проектная вероятность повреждения топливных сборок при сухом хранении в течение 50 лет варьируется в диапазоне от 3% до 50% в зависимости от степени коррозии. Беспокойство вызывает тот факт, что, по различным оценкам, в результате травления внутренней поверхности оболочек твэлов их толщина может уменьшаться на 10-40% в процессе их эксплуатации в реакторе. Коррозия оболочек твэлов при сухом хранении может привести к уменьшению их механической прочности и, в конечном счете, к их разрушению.

Учитывая, что контроль или возможность измерения температуры, давления или состояния топливных сборок при хранении не предусмотрены, единственным инструментом для оценки состояния топливных сборок остается проведение модельных исследований с облученными материалами и экстраполяция экспериментальных данных на последующие условия хранения ТВС.

Целью работы является определение закономерностей изменения структуры, физико-механических свойств и коррозионной стойкости материалов оболочки и штатного чехла ТВС в зависимости от полученной дозы реакторного облучения и последующего термического и механо-термического воздействия в штатных и аварийных режимах длительного сухого хранения.

4.1 Общая информация об объекте исследования

Объектом исследования являются фрагменты отработавших элементов активной зоны (чехол и вытеснитель) реактора БН-350, получившие высокие повреждающие дозы (до 71 сна). Фрагменты из ОТВС № 71517003188 и Ц-1сп представляют собой пластины размером 50×20×2 мм, вырезанные из участка «центр АЗ». ОТВС были изготовлены из ферритно-мартенситной стали марки 1Х13М2БФР (ЭП-450). За время эксплуатации фрагменты ОТВС № 71517003188 и Ц-1сп получили повреждающие дозы 61 и 71 сна соответственно. В качестве материала оболочки твэла выбран межканальный вытеснитель, изготовленный из аустенитной стали 09Х16Н15МЗБ (ЭИ-847), образцы отобраны из различных отметок относительно ЦАЗ, и получившие за время эксплуатации повреждающую дозу до 50 сна.

Дополнительные характеристики элементов ОТВС приведены в таблице 4.1.

Таблица 4.1. Характеристики объекта исследования

Усл. номер (№ паспорта)	Наименование изделия, материал	Расстояние от ЦАЗ, мм	Наработка, эфф. суток	фт, см ² ·10 ²³	Максимальная доза, сна	T _{вх} , °С	T _{вых} , °С	Максимальная скорость набора дозы, сна/с, 10 ⁻⁶
№ 6	Чехол 71517003188, сталь 1Х13М2БФР (ЭП-450)	0	485	2,31	61,575	2285 – 290	4440 – 450	1,47
№ 7	Чехол Ц-1, сталь 1Х13М2БФР (ЭП-450)	0	474,9	2,386	71,184			1,73
№ 8	Вытеснители	-175	323,2	1,672	50,44			1,81
№ 9	Ц-1сп, сталь	0						
№ 10	09Х16Н15МЗБ (ЭИ-847)	+175						

4.2 Состояние конструкционных материалов штатного ОТВС

Для проведения комплексной характеристики элементов (чехол и вытеснитель) ОТВС реактора БН-350 с применением современных методов исследования была разработана программа исследований, включающая объем работ, порядок и условия их проведения.

Неразрушающий контроль фрагментов был выполнен с целью идентификации особенностей состояния поверхности и размеров с применением неразрушающих методов контроля, таких как визуальный осмотр, гидростатическое взвешивание, измерение геометрических параметров и др.

В результате визуального осмотра фрагментов чехла сборок № 6 (ТВС 71517003188) и № 7 (ТВС Ц-1) была выявлена высокая степень коррозионного повреждения различного характера.

На поверхности имеются различные дефекты (риски, заусенцы и т.п.), сформированные как на этапе изготовления, так и на этапе отбора фрагментов.

Отличие наружных и внутренних поверхностей ярко выражено на фрагменте чехла № 7.

На внутренней поверхности фрагмента чехла № 6 имеются участки с язвенной коррозией (стрелками показаны на рисунке 4.1). На наружной стороне имеются следы язвенной коррозии, равномерно распределенные по поверхности.

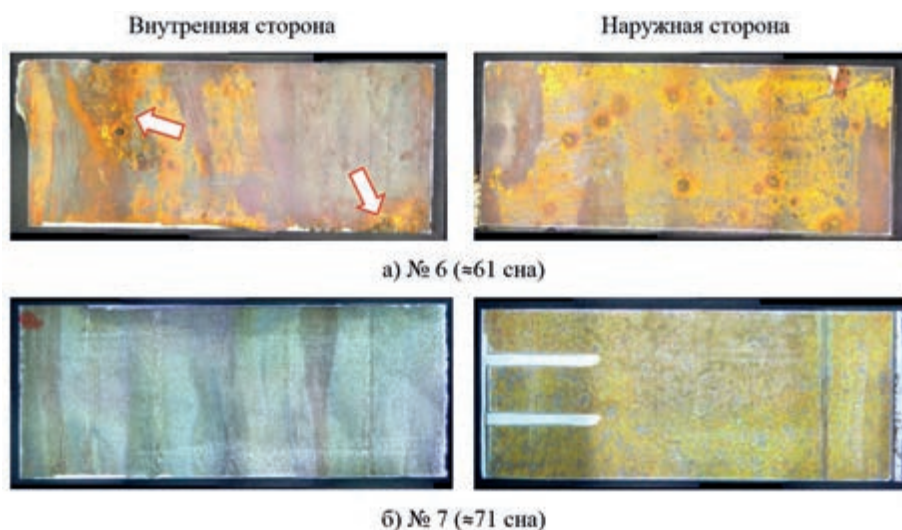
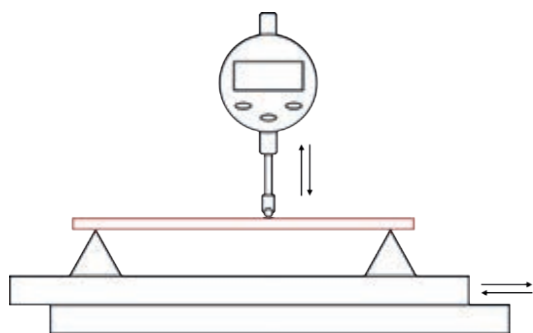


Рисунок 4.1. Фотография внешнего вида фрагментов чехла ОТВС

При визуальном осмотре фрагментов грани чехла было обнаружено их формоизменение, предположительно в результате радиационного распухания и ползучести ТВС. Для оценки величины прогиба был собран стенд, состоящий из цифрового индикатора с дискретностью 1 мкм, универсального штатива УШ-1 и двух координатного пред-

метного столика. Фотография стенда и схема измерения представлена на рисунке 4.2. Данный стенд позволил определить относительный прогиб фрагмента стенки чехла ТВС.



а) схема измерения



б) фото стенда для измерения

Рисунок 4.2. Специальный стенд для измерения прогиба грани ТВС

На рисунке 4.3 приведено распределение стрелы прогиба грани шестигранного чехла из ферритно-мартенситной стали ЭП-450 с различными повреждающими дозами. Как видно из рисунка, стрела прогиба, в основном, симметрично распределена по всей ширине грани, за исключением участка – правая сторона фрагмента № 6, где имеется наибольшее коррозионное повреждение.

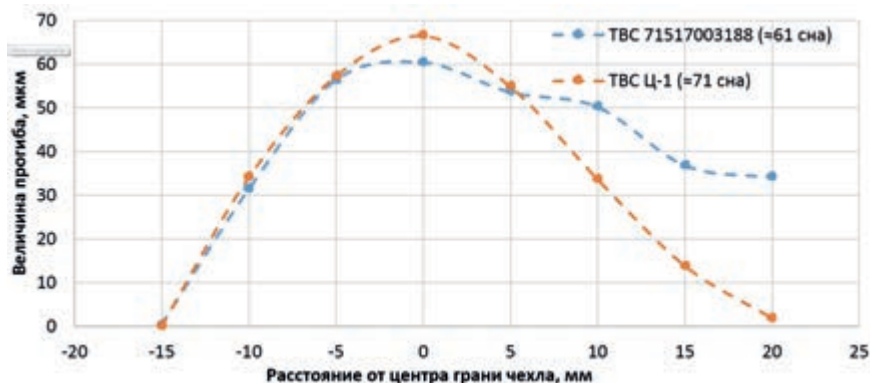


Рисунок 4.3. Изменение стрелы прогиба по ширине грани ТВС

Выявлено, что максимальное значение прогиба грани чехла ТВС из ферритно-мартенситной стали с повреждающей дозой до 71 снв не превышает 100 мкм [1].

Изгиб сборок может возникнуть под воздействием неоднородности энерговыделения, контактных нагрузок взаимодействия между сборками, усилий при удалении ТВС. Сборки деформируются в процессе эксплуатации под воздействием радиационной ползучести и набухания материала чехла при изменении температуры и плотности нейтронного потока в объеме активной зоны. Максимальные эффекты формоизмене-

ния ТВС имеют место на периферии активной зоны, где градиенты температуры и нейтронного потока максимальны.

Как известно, стали ферритно-мартенситного класса марки ЭП-450 в значительной степени меньше подвержены к распуханию и формоизменению по сравнению со сталью аустенитного класса, в которой стрела прогиба при аналогичных условиях достигает 0,5 мм [2].

Измерение плотности фрагментов вытеснителя ТВС Ц-1сп, отобранных из различных отметок от ЦАЗ («-175 мм», «0 мм» и «+175 мм»), выполнялось с целью обнаружения изменения плотности в результате радиационного распухания при различных условиях дозы облучения.

На рисунке 4.4 представлена график изменения плотности материала в зависимости от расстояния от ЦАЗ.

Результаты гидростатического взвешивания показали, что плотность материала вытеснителя из центра активной зоны («0 мм» от ЦАЗ), имеющий наибольшую повреждающую дозу, меньше на 0,5% по сравнению с материалом из отметки «-175 мм» от ЦАЗ. Сравнительно небольшое значение распухания в зависимости от расстояния к ЦАЗ детально проанализирована в работах автора Поролло С.И. [3], где показано, что основными фазами, влияющими на процесс порообразования, являются G-фазы и выделения типа МХ. Выделения G-фазы, часть из которых ассоциирована с порами, в сталях ЭИ-847 существуют в температурном диапазоне 350-475 °С. Их размер и объемная доля растут, а концентрация практически не меняется с ростом дозы. Анализ фазового состава показывает, что образование большого количества мелко- дисперсных выделений типа МХ (Nb,(CN) и TiC для сталей ЭИ-847 формирует микроструктуру стали с достаточно высоким сопротивлением к распуханию. Таким образом на данном типе стали в аустенизированном состоянии высокая концентрация выделений типа МХ с повышенным содержанием кремния значительно снижает распухание стали.

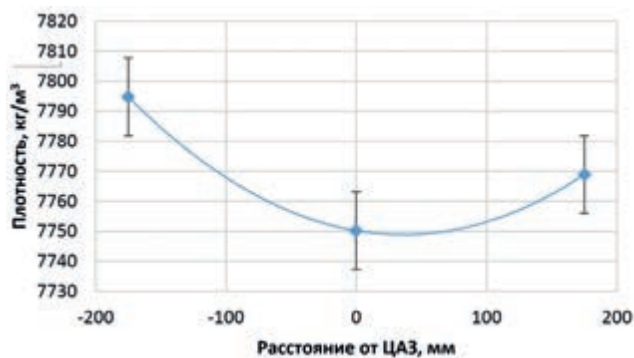
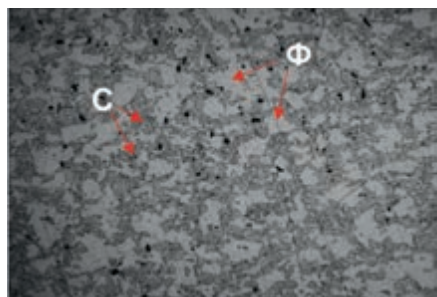


Рисунок 4.4. Распределение плотности в зависимости от расстояния относительно ЦАЗ

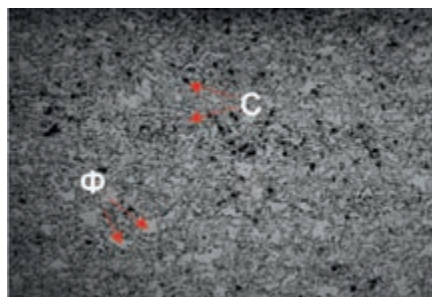
Чехол ОТВС из ферритно-мартенситной стали ЭП-450

Структура материала чехла ОТВС № 71517003188 с повреждающей дозой 61 сна из ферритно-мартенситной стали ЭП-450 в основном состоит из зерен феррита (α -железо, Ф) и зернистого сорбита (С), представляющий собой дисперсную разно-

видность перлита – эвтектоидную смесь феррита и цементита (карбид железа Fe_3C) (рисунок 4.5). Объемное содержание ферритной и сорбитной структурных составляющих соотносится как 1:1 [4]. Ферритные зерна резко очерчены и хорошо видны, в то время как зерна сорбита мельче, с размытыми краями и с обрывающимися границами [5]. Распределение зерен дуплексной структуры близко к типу ожерельчатой структуры, где мелкие зерна сорбита обволакивают относительно крупных зерен феррита (рисунок 4.5а).



а) № 6

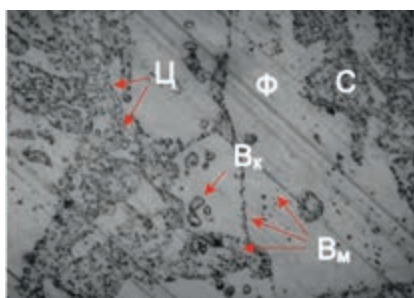


б) № 7

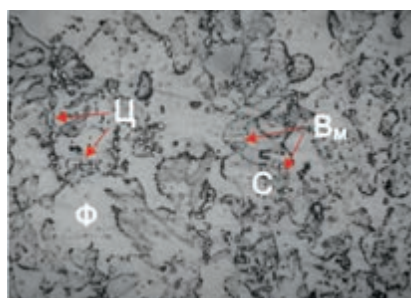
Рисунок 4.5. Микроструктура облученной стали ЭП-450. Увеличение 200×

Изучение микроструктуры в различных направлениях (плоскостях) выявило анизотропность макроструктуры, которая наблюдается в виде частично ориентированной структуры, где зерна феррита ориентированы (слегка вытянуты) параллельно направлению прокатки.

При больших увеличениях микроструктуры отдельных зерен структурных составляющих наблюдается наличие макроцепочек цементитной фазы (Ц), которые располагаются как внутри зерен сорбита и феррита, так и по их границам (рисунок 4.6). Также наблюдается множество мелких точечных (B_m) и крупных округлых (B_k) включений карбидного типа.



а) № 6



б) № 7

Рисунок 4.6. Микроструктура облученной стали ЭП-450. Увеличение 1000×

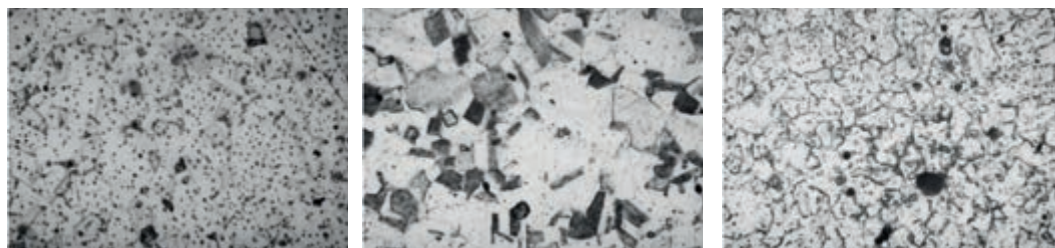
В структуре материала другой сборки Ц-1 с повреждающей дозой 71 сна объемное содержание феррита (Ф) меньше чем содержание сорбита (С), и их соотношение близко к значению 1:2,5. Из-за меньшего содержания феррита в структуре практически не

наблюдается ориентированность за исключением того, что некоторые крупные зерна феррита вытянуты параллельно направлению прокатки.

Вытеснитель сборки Ц-1сп из аустенитной стали ЭИ-847

Структура материала вытеснителя из аустенитной стали 09Х16Н15М3Б (ЭИ-847), отобранного из различных отметок от ЦАЗ, характеризуется равноосными зернами аустенита (γ -железо) с крупными и мелкими включениями (рисунок 4.7). На отметках «-175» и «0» от ЦАЗ зерна аустенита имеют прямые края и характерные двойники. В тоже время на отметке «+175» зерна имеют закругленные края и без двойников. В структуре присутствует множество неметаллических включений примесных элементов.

В продольном сечении присутствует слегка полосчатое расположение крупных неметаллических включений, а ориентированность зерен аустенита не наблюдается (рисунок 4.1).

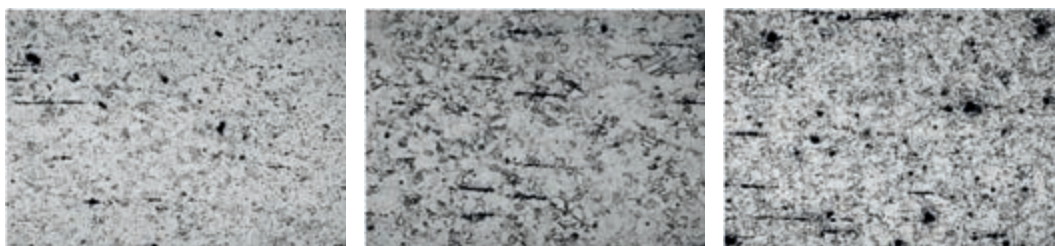


а) «-175» мм от ЦАЗ

б) «0» мм от ЦАЗ

в) «+175» мм от ЦАЗ

Рисунок 4.7. Микроструктура поперечного сечения материала вытеснителя на различных отметках по высоте активной зоны. Увеличение 1000 \times



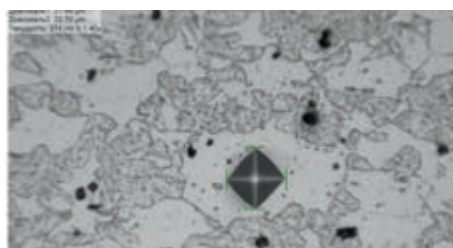
а) «-175» мм от ЦАЗ

б) «0» мм от ЦАЗ

в) «+175» мм от ЦАЗ

Рисунок 4.8. Микроструктура продольного сечения материала вытеснителя на различных отметках по высоте активной зоны. Увеличение 200 \times

Измерение микротвердости отдельных структурных составляющих (феррит и сорбит) материала стали ЭП-450 выполнено при нагрузках 0,1 кг. На рисунке 4.9 представлены квадратные отпечатки индентора Виккерса. Измерение было выполнено при различных сечениях, как продольных, так и поперечных. Во всех измеренных сечениях микротвердость ферритной составляющей была больше на 3 – 6% чем сорбитной. В различных сечениях микротвердость структурных составляющих менялось до 20HV, при этом определенная закономерность не наблюдается (таблица 4.2).



а) феррит



б) сорбит

Рисунок 4.9. Отпечаток индентора Виккерса на структурных составляющих феррита и сорбита материала чехла № 6

Таблица 4.2. Значение микротвердости в материале различных ТВС из дуплексной стали ЭП-450

ТВС	Сторона	Микротвердость		$(HV_{\phi} - HV_c) \times 100\%$
		Феррит, HV_{ϕ}	Сорбит, HV_c	
№ 6	наружная	378	363	4,0%
	внутренняя	365	350	4,3%
	сечение	373	352	6,0%
	ср. значение	372	355	4,8%
№ 7	наружная	395	378	4,7%
	внутренняя	371	360	2,9%
	сечение	364	352	3,4%
	ср. значение	377	363	3,7%

Было сделано предположение, что в материале чехла ТВС из аустенитной стали [6] значение микротвердости изменяется по толщине стенки чехла. В связи с этим было проведено измерение микротвердости ферритной составляющей чехла № 6 по всей толщине стенки (рисунок 4.10). На графике видно, что значение микротвердости имеет характерное распределение, выраженное в виде симметричного возрастания от центра к боковой поверхности.

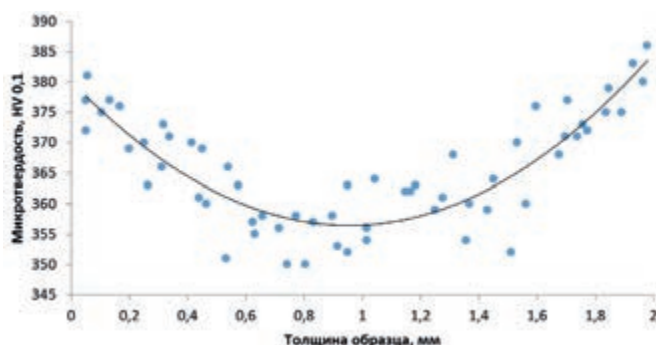


Рисунок 4.10. Распределение микротвердости ферритной составляющей по толщине стенки чехла № 6

Интересно отметить, что вышеуказанное симметричное распределение микротвердости не наблюдается при измерениях микротвердости по материалу (феррит+сорбит) с увеличенной нагрузкой на индентор ($P = 0,2$ кг). При этом значения микротвердости материала сборок № 6 и № 7 практически равны, с учетом погрешности измерений, и соответствуют 356 ± 4 HV_{0,2} и 360 ± 5 HV_{0,2}.

На рисунке 4.11 приведено распределение микротвердости материала вытеснителя из аустенитной стали ЭИ-847 по высоте активной зоны. Видно, что ближе к верхней части активной зоны микротвердость аустенитных зерен плавно снижается до 5 %, которое, возможно, обусловлено тем, что длительное воздействие более повышенной температуры облучения приводит к релаксации внутренних напряжений [7].

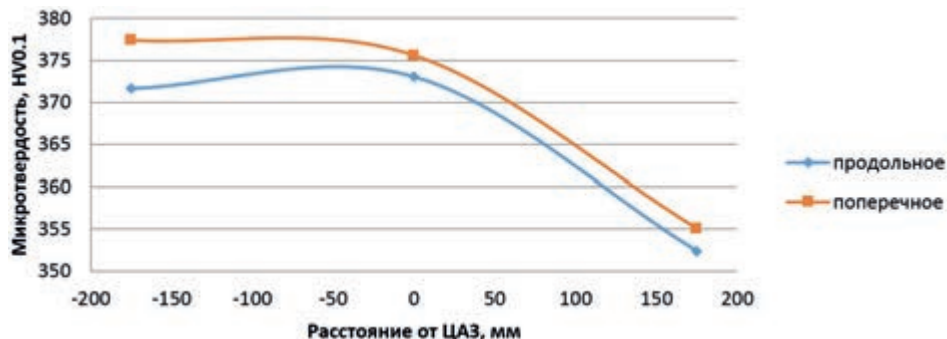


Рисунок 4.11. Изменение микротвердости материала вытеснителя ТВС Ц-1сп в зависимости от расстояния от ЦАЗ

4.3 Коррозионная повреждаемость конструкционных материалов ОТВС при кратковременных термическом и механо-термическом воздействиях

Условия проведения испытаний

Изохронный термический отжиг

Изохронные термические отжиги образцов по 4 шт. из двух ОТВС выполнялись в камере лабораторной муфельной печи СНОЛ 8,2/1100. Условия проведения термических испытаний приведены в таблице 4.3.

Таблица 4.3. Условия проведения термических испытаний

Тип образца	Температура испытаний, °С	Длительность испытаний, ч
Тип I	450	1
	600	
	750	
	900	

В процессе отжига образцы были расположены в керамических лодочках. Отжиги проведены в среде воздуха при температурах 450 °С; 600 °С; 750 °С и 900 °С, близких и значительно превышающих температуру облучения.

Механо-термическое испытание

Кратковременные механо-термические испытания различных ОТВС проводились при температуре 450 °С, близкой к температуре облучения. Условия проведения механо-термических испытаний приведены в таблице 4.4.

Таблица 4.4. Условия проведения механо-термических испытаний

Тип образца	Доля от σ_T	Температура испытаний, °С	Длительность испытаний, ч
Тип II	0,5	450	10
	0,8	450	

Сущность механо-термического испытания заключается в экспонировании образцов в условиях, сочетающих воздействие термического фактора в среде атмосферы и внешних растягивающих напряжений. Испытания образцов типа II, отобранных из ОТВС (Ц-1 и ТВС 71517003188), проведены при напряжениях равных 0,5 и 0,8 от условного предела текучести (σ_T) испытываемого материала. Напряжение в образцах создается под воздействием постоянной деформации.

Процедура проведения механо-термического испытания состоит из нескольких этапов: 1 этап – определение величины нагрузки; 2 этап – приложение требуемой нагрузки; 3 этап – термическое воздействие.

Так как величина нагрузки задается в долях от предела условного текучести (σ_T) материала, то его значение было определено посредством трехточечного изгиба образца того же материала с формированием пластической деформации. Из диаграммы «Напряжение-деформация» графическим способом определяется условный предел текучести (σ_T) с допуском на остаточную деформацию 0,035%.

Для определения предела текучести материала ОТВС было проведено испытание образца № 6-1 (размеры 20×2×1,5 мм) на трехточечный изгиб. Из диаграммы «напряжение-деформация» определено значение условного предела текучести σ_T , равное 1037 МПа (рисунок 4.12).

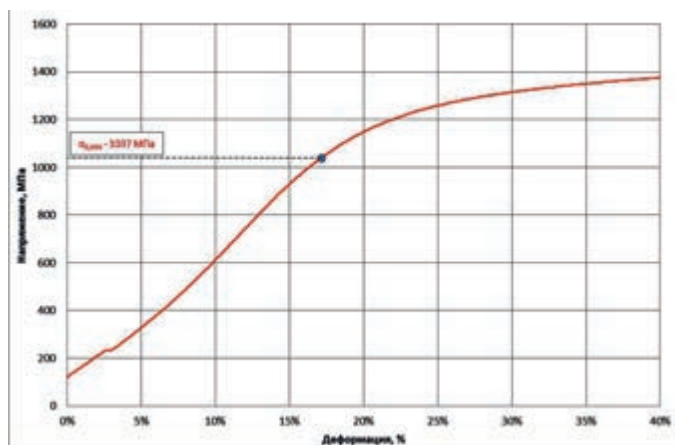


Рисунок 4.12. Диаграмма «Напряжение-деформация» трехточечного изгиба образца № 6-1

На втором этапе осуществляется приложение требуемой нагрузки на испытуемый образец при постоянной деформации изгиба. Нагрузка задается с точностью ± 1 Н на универсальной испытательной машине Instron 5966, в зажимные устройства которой монтируется испытательное приспособление (рисунок 4.13а). Требуемые нагрузки для испытательных образцов согласно условиям испытания (таблица 4.4) и с учетом фактических геометрических размеров приведены в таблице 4.5.



а) приложение требуемой нагрузки



б) термическое воздействие

Рисунок 4.13. Фотография захватного приспособления на различных этапах механо-термического испытания

Таблица 4.5. Значения прилагаемой нагрузки на испытуемые образцы

Название образца	№ ОТВС	Размеры, мм		Пролет между опорами, мм	Доля от σ_T	Нагрузка, Н
		ширина	толщина			
6-МТ-1	Ц-1	4,18	2,11	15,00	0,5	429
6-МТ-2		4,14	2,10		0,8	673
7-МТ-1	71517003188	4,14	1,96		0,5	367
7-МТ-2		4,15	1,96		0,8	588

Коррозионная повреждаемость ферритно-мартенситной стали ЭП-450 при кратковременном термическом воздействии

Количественная оценка коррозионных повреждений материала отработавших ТВС в результате термических испытаний выполнены путем определения глубинных показателей коррозии на поверхности образцов. Определение глубинных показателей коррозии осуществлялись массометрическим и металлографическим методами.

Для получения значения глубинного показателя коррозии массометрическим методом для каждого испытанного образца был определен удельный привес путем взвешивания на аналитических весах Mettler Toledo MS205DU с дискретностью 0,01 мг.

Массовый отрицательный показатель коррозии (K_m^-) определен согласно формуле [8]

$$K_m^- = 8,76 \cdot 10^6 \cdot \frac{\Delta m}{S_n \cdot t} \quad , \quad (1)$$

где Δm – привес образца, г;

S_n – суммарная площадь поверхности образца до испытания, мм²;

t – продолжительность испытания, ч.

Затем, используя значения геометрических параметров, плотности оксида железа и привеса, была рассчитана толщина коррозионного слоя (глубинный показатель) по формуле

$$h_{\text{масс}} = \frac{\Delta m}{\rho \cdot S_n} \cdot 10^3 \quad , \quad (2)$$

где $h_{\text{масс}}$ – толщина коррозионного слоя, рассчитанная массометрическим методом, мкм;

ρ – плотность оксида железа, равная $5,87 \cdot 10^{-3}$ г/мм³;

Δm – привес образца, г;

S_n – суммарная площадь поверхности образца до испытания, мм².

В таблице 4.6 представлены данные по оценке массометрическим методом толщины коррозионного слоя образцов материала ОТВС после кратковременных термических испытаний.

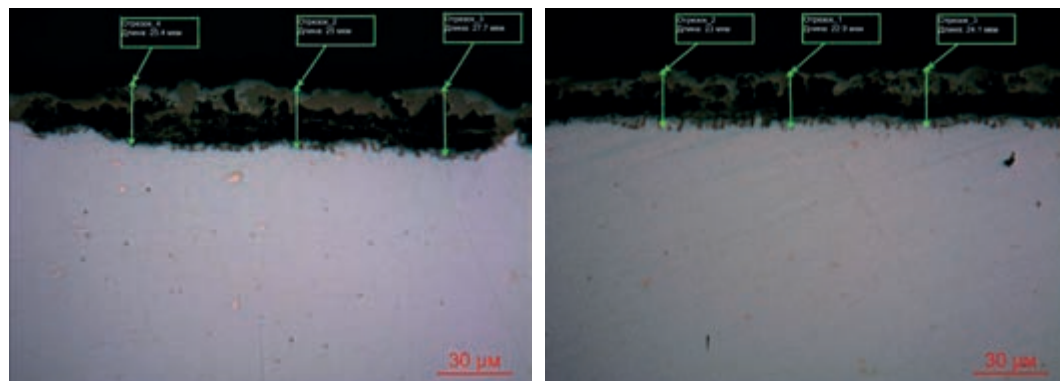
Таблица 4.6. Результаты оценки толщины коррозионного слоя материала ОТВС массометрическим методом

№ ОТВС	Ц-1 (№ 6)				71517003188 (№ 7)			
	450	600	750	900	450	600	750	900
$T, ^\circ\text{C}$	450	600	750	900	450	600	750	900
$m_0, \text{г}$	0,18749	0,17190	0,17724	0,16761	0,15257	0,160536	0,154812	0,15929
$m_1, \text{г}$	0,18753	0,17229	0,17815	0,16991	0,15261	0,16093	0,15558	0,16208
$\Delta m, \text{г}$	0,00004	0,00038	0,00091	0,00230	0,00004	0,00039	0,00076	0,00279
$S_n, \text{мм}^2$	52,0	51,5	48,8	52,3	55,9	54,8	50,5	51,8
$K_m, \text{мг/мм}^2 \cdot \text{год}$	6,6	61,3	157,8	388,3	6,7	66,7	137,0	467,4
$h_{\text{масс}}, \text{мкм}$	0,1	1,2	3,1	7,6	0,1	1,3	2,7	9,1

С целью определения толщины коррозионного поражения материала ОТВС металлографическим методом были подготовлены шлифы поперечного сечения испытанных образцов. Измерение толщины продуктов коррозии проводилось на металлографическом микроскопе ICX-41M с применением программного обеспечения Altami Studio. Перед измерением была выполнена калибровка измерительных средств программного обеспечения с помощью объекта-микрометра типа ОМО с дискретностью 0,01 мм.

Микрофотография поперечного сечения образцов материала ОТВС после отжига при температуре 900 °С и результаты измерения толщины коррозионного слоя представлены на рисунке 4.14 (см. стр. 164). Из рисунка видно, что после отжига при температуре 900 °С материал образцов разрушается преимущественно под по-

верхностью, и продукты коррозии оказываются сосредоточенными внутри материала. Также видно, что подповерхностная коррозия вызывает вспучивание и расслоение испытуемого материала.



а) ОТВС Ц-1 (№ 6)

б) ОТВС 71517003188 (№ 7)

Рисунок 4.14. Примеры металлографического метода измерения толщины коррозионного слоя на микрофотографиях при увеличении 1000×

Зависимости толщины коррозионного слоя материала ОТВС от температуры отжига, определенные различными способами, представлены на рисунке 4.15.

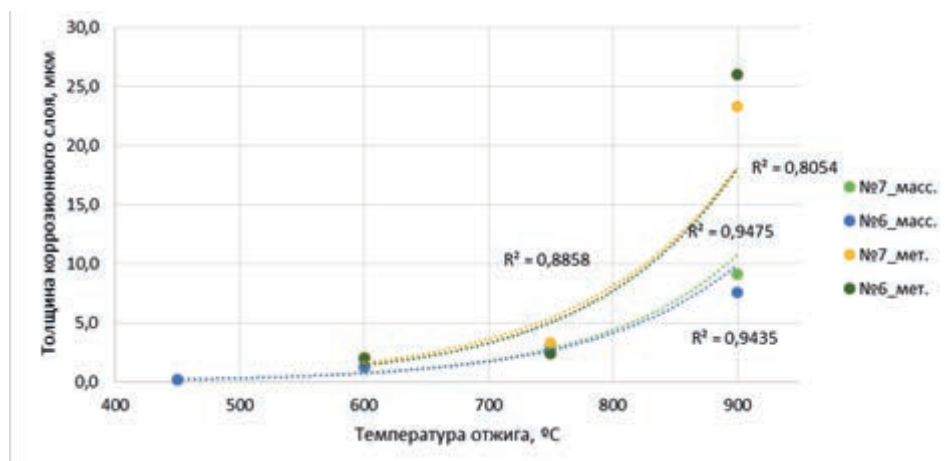


Рисунок 4.15. Зависимости толщины коррозионного слоя материала ОТВС № 6 и № 7, определенные различными способами, от температуры отжига

Установлено, что рост толщины коррозии материала ОТВС с различными повреждающими дозами в интервале температур 450 – 900 °C подчиняется логарифмическому закону [9]. С повышением температуры отжига выше 750 °C проявляется заметное расхождение между зависимостями, определенными различными методами, что, возможно, является следствием протекания неравномерной (локализованной) коррозии.

Коррозионная повреждаемость ферритно-мартенситной стали ЭП-450 при механо-термическом воздействии

В ходе продолжительного одновременного воздействия на металлы и сплавы коррозионного поражения и статических растягивающих напряжений, меньших предела текучести, происходит их хрупкое разрушение, называемое коррозионное растрескивание (КР) [10]. Процессу КР присущи следующие свойства [11]:

- наличие хрупкого характера трещин;
- зарождение и рост трещин направлены перпендикулярно растягивающим напряжениям;
- образование межкристаллитных, транскристаллитных или смешанных трещин с разветвлениями;
- зависимость времени до растрескивания от уровня внешних приложенных растягивающих напряжений.

По результатам измерения остаточной деформации образцов после механо-термических испытаний зафиксировано незначительное формоизменение в центральной части, т.е. в зоне максимальной растягивающей нагрузки (рисунок 4.16). В пределах одного ОТВС максимальный прогиб подчиняется приложенной нагрузке, то есть зависит от степени изгибающего напряжения. А между различными ОТВС видно, что максимальный прогиб образца ОТВС № 7, наблюдаемый при напряжении $0,8 \sigma_r$, не достигает максимального прогиба образца ОТВС № 6, испытанного при низких напряжениях $0,5 \sigma_r$. Иными словами можно утвердить, что в результате механо-термических испытаний «скорость ползучести» материала ОТВС № 6 выше, чем материала ОТВС № 7.

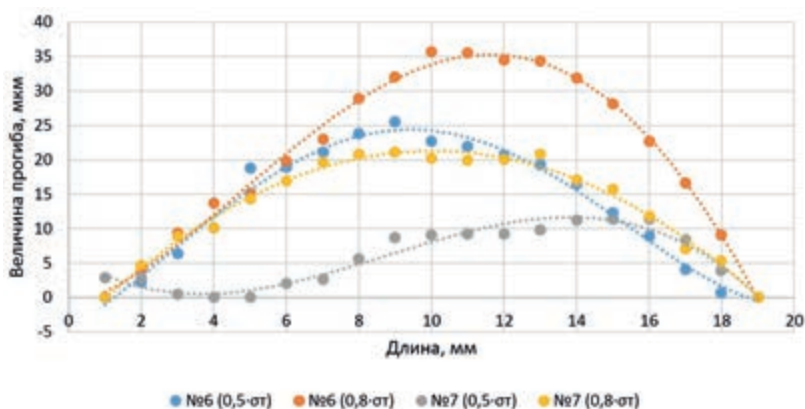


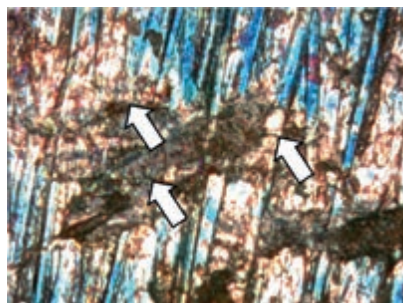
Рисунок 4.16. Распределение величины прогиба по длине образцов после механо-термических испытаний

На рисунке 4.17 (см. стр. 166) представлены микрофотографии поверхности материала различных ОТВС после механо-термических испытаний. Микрофотографии получены с помощью оптического микроскопа Sor-Top ICX-41M в отраженном свете при увеличениях $500\times$.

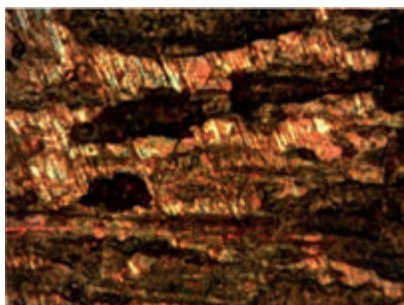
Только в образцах, испытанных при нагрузке $0,8 \cdot \sigma_T$, наблюдаются очаги микротрещин (показаны стрелками) на имеющихся коррозионных язвах. Необходимо отметить, что после реакторного облучения и последующего «мокрого» хранения на поверхности материала чехла ОТВС, изготовленных из ферритно-мартенистной стали ЭП-450, были обнаружены различные типы коррозионного разрушения [1]. Микротрещины, в основном, локализованы в зоне максимального растягивающего напряжения и ориентированы поперек образца.



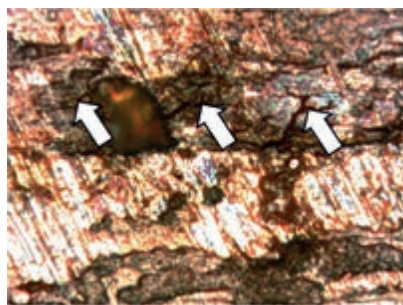
а) ОТВС Ц-1 (№ 6) после испытаний при напряжении $0,5 \cdot \sigma_T$



б) ОТВС Ц-1 (№ 6) после испытаний при напряжении $0,8 \cdot \sigma_T$



в) ОТВС 71517003188 (№ 7) после испытаний при напряжении $0,5 \cdot \sigma_T$



г) ОТВС 71517003188 (№ 7) после испытаний при напряжении $0,8 \cdot \sigma_T$

Рисунок 4.17. Микрофотография поверхности материала различных ОТВС после механо-термических испытаний. Увеличение 500×

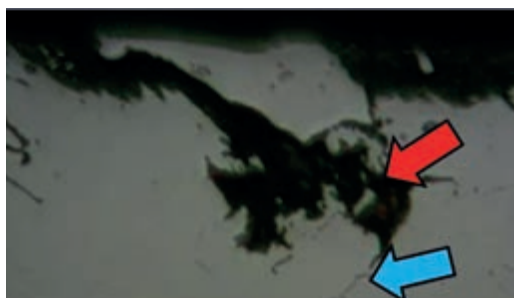
С целью обнаружения участков распространения микротрещин в глубину материала ОТВС после механо-термических испытаний были изготовлены поперечные металлографические шлифы. На рисунке 4.18 представлены микрофотографии поперечного сечения испытанных образцов материала различных ОТВС. В материале ОТВС Ц-1 (№ 6) наблюдаются участки распространения трещин по глубине материала.

По размеру и характеру распространения эти трещины можно разделить на две группы. Первая группа – крупные трещины смешанного характера, распространяющиеся от поверхности материала (показаны стрелками красного цвета). Вторая группа – трещины малых размеров (микротрещины) межкристаллитного характера, являющиеся продолжением трещины первой группы по глубине материала. Вторая группа

трещин, вероятнее всего, сформировались в процессе механо-термических испытаний (показаны стрелками красного цвета). Интересно отметить, что микротрещины (вторая группа) наблюдаются только в образцах материала чехла ОТВС Ц-1, которые имеют наибольшую остаточную деформацию в результате механо-термических испытаний.



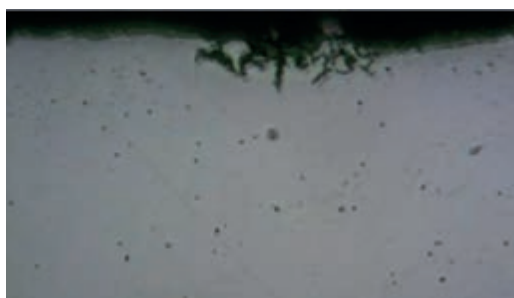
а) ОТВС Ц-1 (№ 6) после испытаний при напряжении $0,5 \cdot \sigma_T$



б) ОТВС Ц-1 (№ 6) после испытаний при напряжении $0,8 \cdot \sigma_T$



в) ОТВС 71517003188 (№ 7) после испытаний при напряжении $0,5 \cdot \sigma_T$



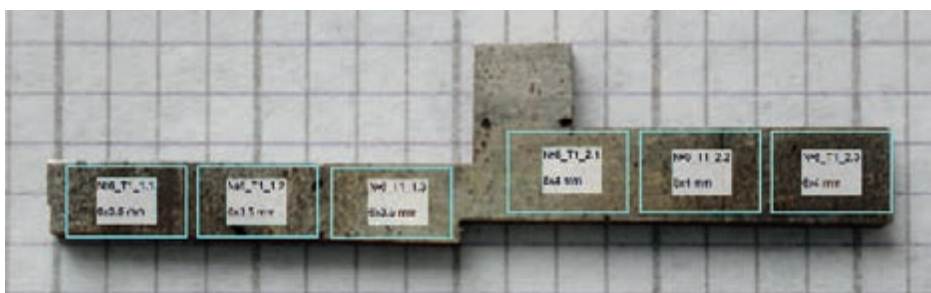
г) ОТВС 71517003188 (№ 7) после испытаний при напряжении $0,8 \cdot \sigma_T$

Рисунок 4.18. Микрофотография поперечного шлифа материала различных ОТВС после механо-термических испытаний. Увеличение 500×

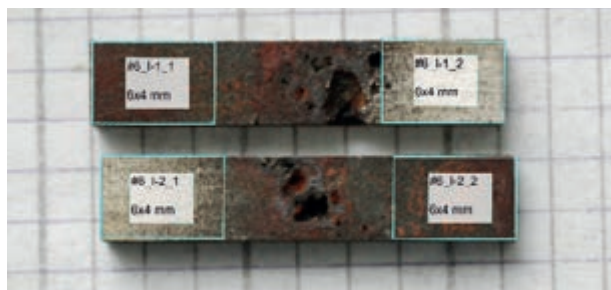
4.4 Изменение структуры и свойств конструкционных материалов ОТВС при длительном изотермическом воздействии

Изготовление образцов из фрагментов чехла ОТВС

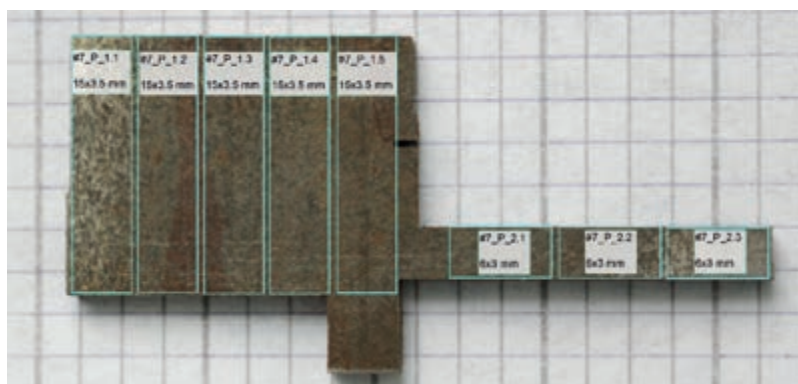
Процедура разделки каждого фрагмента чехла ОТВС была выполнена согласно индивидуальной схеме разделки (рисунок 4.19 на стр. 168), учитывающей условия и особенности резки проволочно-вырезного способа и последовательность выполнения резов. В результате разделки фрагментов элементов ОТВС были изготовлены образцы в количестве 27 шт.: 18 образцов (13 образцов исследовательского типа и 5 образцов испытательного типа) из фрагментов чехла ОТВС и 9 образцов (испытательного типа) из фрагментов вытеснителя ОТВС. Вырезка образцов требуемой формы выполнялась электроискровым проволочно-вырезным методом на станке типа 4531.



а) ОТВС № 6 (7151700318), фрагмент «Т»



б) ОТВС № 6 (7151700318), фрагменты «I-1» и «I-2»



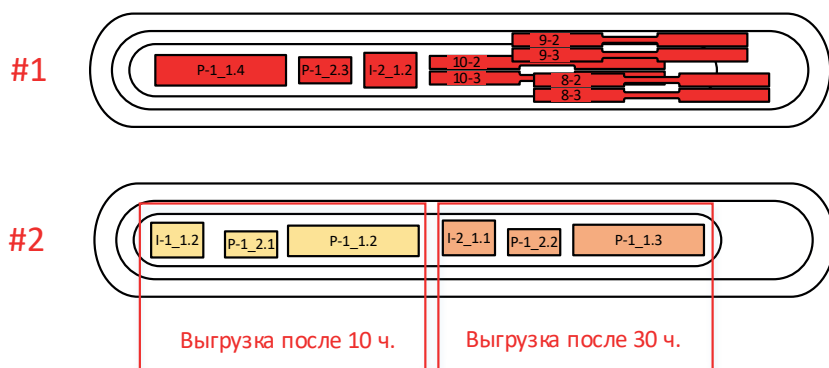
в) ОТВС № 7 (Ц-1), фрагмент «Р»

Рисунок 4.19. Индивидуальная схема разделки фрагментов ОТВС

Условия проведения испытаний

Результаты численного моделирования термического состояния отработавших ТВС реактора БН-350 в условиях долговременного сухого хранения показывают [12], что значения температуры в корпусе ТВС и в твэлах зависят от толщины бетона, мощности остаточного энерговыделения в ТВС и от газа-наполнителя. Максимальная расчетная температура в среднем сечении контейнера равна 472 °С и получена при толщине бетона 1,0 м и мощности остаточного энерговыделения в одной ТВС 190 Вт при заполнении контейнера аргоном.

В АУ нагревательной камеры были загружены образцы, размещенные в двух керамических лодочках, которые закреплены в держатель. Экспериментальная сборка нагревалась до температуры 470 °С в среде аргона и выдерживалось при изотермическом режиме (470±2) °С. Суммарная длительность термических испытаний составила 100 ч с промежуточными этапами выгрузка/загрузка для отбора испытуемых образцов в контрольных точках (10 ч и 30 ч). На рисунке 4.20 представлены фотографии этапа загрузки образцов в АУ.



а) схема расположения испытательных образцов в керамических лодочках



б) внешний вид АУ с образцами

Рисунок 4.20. Загрузка испытательных образцов в АУ

Условия проведения эксперимента приведены в таблице 4.7 (см. стр. 170). В эксперименте по длительному термическому испытанию участвовали исследовательские и испытательные образцы из чехла ОТВС № 6 71517003188 и № 7 Ц-1, а также испытательные образцы из фрагмента вытеснителя ОТВС Ц-1сп, отобранные из разных отметок от ЦАЗ. Также следует отметить, что в набор испытательных образцов были включены референтные образцы из необлученной нержавеющей стали марки 12X18Н10Т.

В процессе эксперимента при достижении длительности контрольных точек 10 ч, 30 ч и 100 ч образцы медленно остывали вместе с печью и только при достижении температуры менее 60 °С производилась разгерметизация и выгрузка необходимых образцов.

Таблица 4.7. Условия проведения эксперимента

ОТВС	Типы образцов	Без термоиспытаний	Термоиспытания при температуре 470 °С		
			10 ч	30 ч	100 ч
№ 6	Испл.	№ 6_I1_1.1	№ 6_I1_1.2	№ 6_I2_1.1	№ 6_I2_1.2
№ 7	Испл.		№ 7_P1_2.1	№ 7_P1_2.2	№ 7_P1_2.3
	Исп.	№ 7_P1_1.1 № 7_P1_1.5	№ 7_P1_1.2	№ 7_P1_1.3	№ 7_P1_1.4
№ 8	Исп.	№ 8-1			№ 8-2; № 8-3
№ 9	Исп.	№ 9-1			№ 9-2; № 9-3
№ 10	Исп.	№ 10-1			№ 10-2; № 10-3
Референтные образцы стали 12Х18Н10Т			12Х_1	12Х_2	12Х_3

Коррозионная повреждаемость ферритно-мартенситной стали ЭП-450 при длительном изотермическом воздействии

Фотографии внешнего вида образцов из фрагмента чехла ОТВС № 6 и № 7 исследовательского типа представлены на рисунке 4.21.

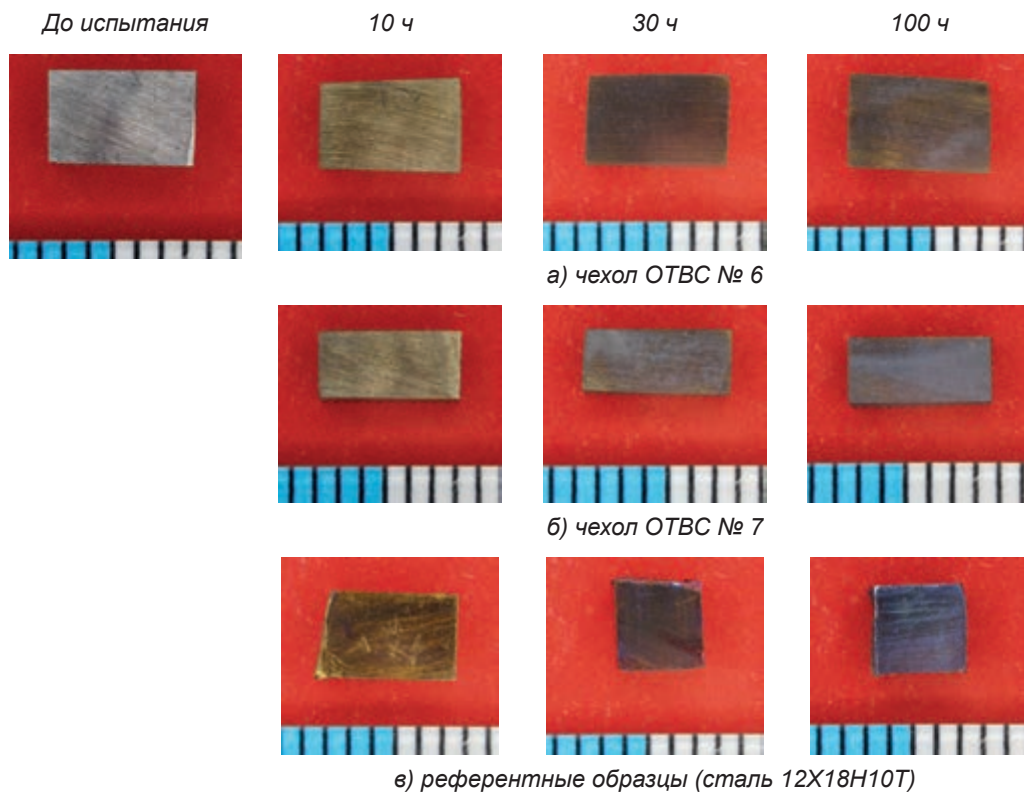


Рисунок 4.21. Внешний вид образцов

Как видно из рисунка, при кратковременной выдержке (10 ч) на поверхности как на облученных, так и на референтных (необлученных) образцах формируется тонкая пленка светло-жёлтого оттенка толщиной приблизительно 0,45 мкм [13]. После 30 ч изотермической выдержки на всех испытуемых образцах наблюдаются различные цветовые оттенки: образцы чехла ОТВС № 6 имеют желто-коричневый цвет (толщина слоя ~ 0,5 мкм); на поверхности образцов ОТВС № 7 на фоне желто-коричневого оттенка имеются участки серого цвета (толщина слоя 0,72 мкм). Референтные образцы, материал которых является более коррозионностойким по сравнению с ферритно-мартенситной сталью ЭП-450, после 30 ч имеет красно-коричневый оттенок (толщина слоя ~ 0,5 мкм). После завершения эксперимента поверхность образцов ОТВС № 6 имеет желто-коричневый цвет с небольшими участками серого оттенка. А образцы чехла ОТВС № 7 имеют сравнительно меньшую стойкость к образованию оксидных пленок, т.к. после 100 ч поверхность образцов практически покрыта слоем серого цвета. Референтный образец в аналогичных условиях имеет фиолетовый оттенок с толщиной слоя около 0,65 мкм.

Количественная оценка коррозионной стойкости была выполнена по массометрическим показателям путем определения привеса массы образцов. Определение массы испытанных образцов выполняли на аналитических весах Mettler Toledo MS205DU с дискретностью измерения 0,01 мг. Точность измерения массы не хуже 0,02 мг.

После 10 ч и 30 ч термического испытания при температуре 470 °С в среде аргона в образцах чехла ОТВС № 6 и № 7 привес не наблюдается, т.е. привес на уровне погрешности измерения (таблица 4.8, таблица 4.9 на стр.172). Только после 100 ч испытания значительная скорость коррозии 0,03 г/м²·ч наблюдается на образце ОТВС № 7 (таблица 4.10). При тех же условиях скорость коррозии на образце ОТВС № 6 достигает лишь 0,01 г/м²·ч.

Относительно высокая коррозионная стойкость материала чехла ОТВС № 6 по сравнению с ОТВС № 7 возможно связано с их микроструктурными особенностями. Ранее по результатам микроструктурного анализа было выявлено [14], что объемное содержание феррита в материале ОТВС № 6 (феррит/сорбит = 1:1) практически в два раза больше, чем в материале ОТВС № 7 (феррит/сорбит = 1:2,5). Хотя в процессе эксплуатации и «мокрого» хранения наибольшее коррозионное повреждение получил именно материал чехла ОТВС № 6 [1].

Таблица 4.8. Результаты определения скорости коррозии (длительность испытания 10 ч)

	ОТВС № 6	ОТВС № 7	Сталь 12Х18Н10Т (необлученный)
Номер образца	I-1_1.2	P-1_2.1	Ст.12Х_1
Масса после 10 ч испытания (M_{10}), г	0,3045	0,19094	0,2819
Исходная масса (M_0), г	0,30451	0,19093	0,28193
Привес массы (ΔM), г	-0,00001	0,00001	-0,00003
Суммарная площадь поверхности образца (S), мм ²	79,9	60,5	77,5
Скорость коррозии (V_{10}), г/м ² ·ч	-0,01	0,02	-0,04

Таблица 4.9. Результаты определения скорости коррозии
(длительность испытания 30 ч)

	ОТВС № 6	ОТВС № 7	Сталь 12Х18Н10Т (необлученный)
Номер образца	I-2_1.1	P-1_2.2	Ст.12Х_2
Масса после 30 ч испытания (M_{30}), г	0,317	0,19453	0,19225
Исходная масса (M_0), г	0,31701	0,19449	0,19225
Привес массы (ΔM), г	-0,00001	0,00004	0
Суммарная площадь поверхности образца (S), мм ²	81,7	61,4	56,5
Скорость коррозии (V_{30}), г/м ² ·ч	0,00	0,02	0,00

Таблица 4.10. Результаты определения скорости коррозии
(длительность испытания 100 ч)

	ОТВС № 6	ОТВС № 7	Сталь 12Х18Н10Т (необлученный)
Номер образца	I-2_1.2	P-1_2.3	Ст.12Х_3
Масса после 100 ч испытания (M_{100}), г	0,31457	0,17953	0,20562
Исходная масса (M_0), г	0,31451	0,17934	0,20562
Привес массы (ΔM), г	0,00006	0,00019	0
Сумарная площадь поверхности образца (S), мм ²	82,4	60,8	58,6
Скорость коррозии (V_{100}), г/м ² ·ч	0,01	0,03	0,00

Изменение твердости и прочностных характеристик

Известно, что термодинамическая неустойчивость различных радиационных дефектов при нагреве облученной стали, начиная с температуры, превышающей температуру облучения, приводит к аннигиляции этих дефектов [15]. При этом восстанавливаются механические свойства облученных материалов. Уровень восстановления свойств зависит главным образом от температуры и длительности отжига, а также металлургического фактора.

Оценка изменения твердости материала чехла ОТВС в результате изотермического воздействия выполнена на автоматическом твердомере Qness Q10A+ при нагрузке на индентор 200 г. Следует отметить, из-за особенностей распределения микротвердости по периметру чехла ОТВС на каждом испытываемом образце было проведено предварительное измерение микротвердости.

На рисунке 4.22 приведены зависимости снижения твердости чехла ОТВС № 6 и № 7 из ферритно-мартенситной стали ЭП-450 в результате длительного отжига при температуре 470 °С, превышающей температуру облучения всего на ~ 120 °С. Твердость материала после облучения составляет 360±5 единиц по шкале Виккерса. Полученные результаты свидетельствуют о том, что наиболее интенсивно снижение (восстановление) твердости происходит в первые часы отжига, в дальнейшем про-

цесс замедляется и значения твердости стабилизируются на уровне, характерном для данной температуры отжига.

Интересно отметить, что твердость материала чехла ОТВС № 6 по сравнению с ОТВС № 7 начинает быстро замедляться уже после 10 ч, и к концу эксперимента (после 100 ч) его твердость равна 320 ± 5 HV0,2, т.е. твердость снизилась на 11%. А твердость материала чехла ОТВС № 7 после 100 ч снизилась на 18%.

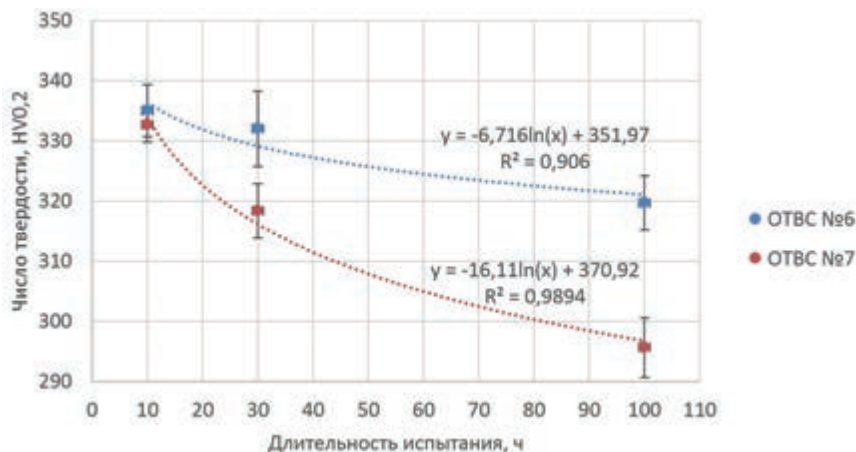
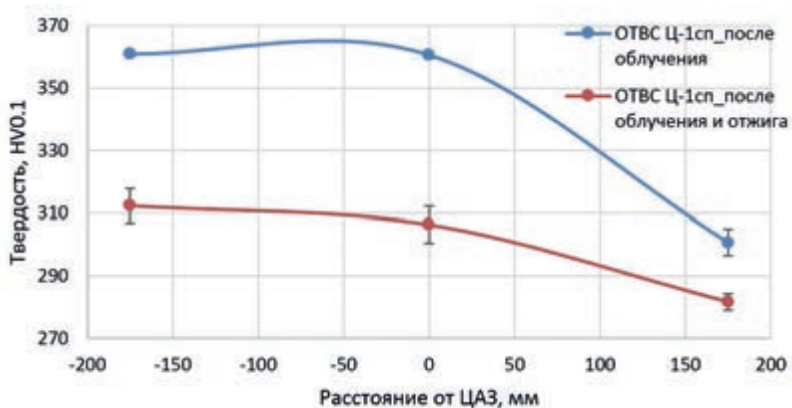


Рисунок 4.22. Зависимость изменения твердости материала чехла ОТВС № 6 и № 7 от длительности изотермического отжига ($T_{const} = 470$ °C)

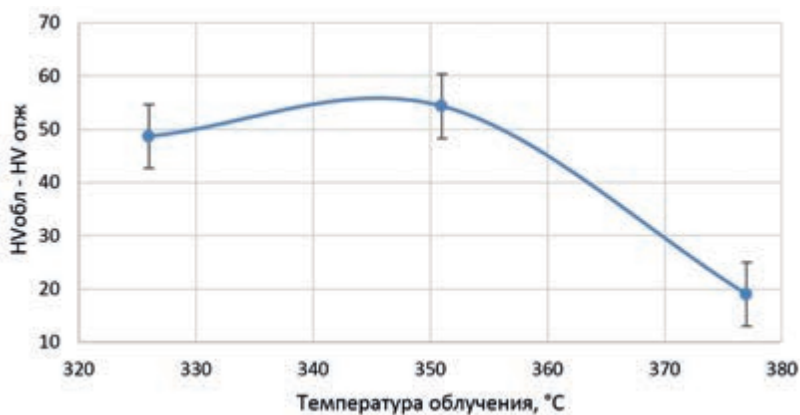
На рисунке 4.23 (см. стр. 174) приведены данные по снижению твердости вытеснителя ОТВС Ц-1сп из аустенитной стали ЭИ-847 в результате длительного отжига при температуре 470 °C в течение 100 ч. В связи с тем, что фрагменты вытеснителя были отобраны из различных отметок от ЦАЗ («-175 мм», «0 мм», «+175 мм»), фактическая (расчетная) температура облучения (T_{obl}) варьировалась в диапазоне от 326 °C до 377 °C согласно данным [16].

Ранее на этапе характеристики элементов штатных ОТВС было обнаружено, что после облучения в материале вытеснителя имеется характерное распределение твердости в зависимости от температуры облучения и флюенса нейтронов [7], где максимальное значение твердости фиксируется в ЦАЗ, а на отметке «+175 мм» наблюдается небольшое понижение твердости. После изотермического отжига максимальное снижение твердости также наблюдается в ЦАЗ на уровне 15%, а на отметке «+175 мм» всего лишь 6%. Такое различие в снижении твердости объясняется степенью радиационного упрочнения и разностью температур облучения и последующего отжига.

Для оценки механических свойств материалов натуральных ОТВС целесообразно применять методику испытания миниатюрных образцов. Методика испытания миниатюрных образцов активно используется в областях науки и техники [17], где из объекта исследования невозможно изготовить довольно объемные испытательные образцы по требованиям стандартов (ГОСТ 1497, ASTM E8 и др.).



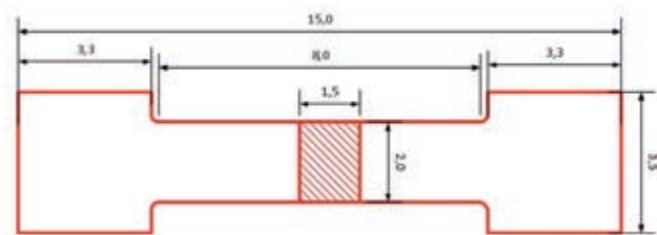
а) расстояние от ЦАЗ



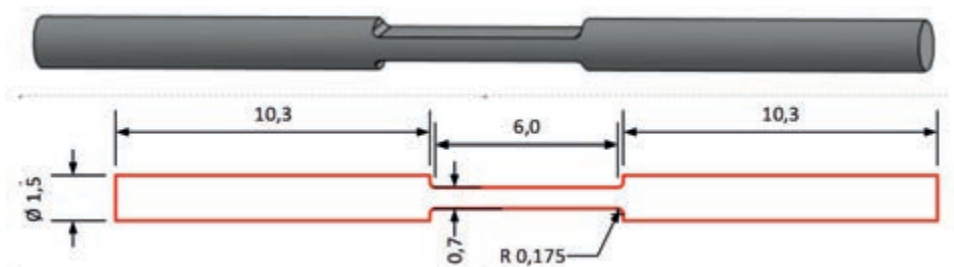
б) в зависимости от температуры облучения

Рисунок 4.23. Снижение твердости вытеснителя ОТВС Ц-1сп в результате изотермического отжига при 470 °С

Для изготовления миниатюрных образцов из фрагментов чехла и вытеснителя ОТВС были разработаны их эскизы с учетом размеров фрагментов, особенностей способа резки и крепления в захватные приспособления. Эскиз и внешний вид миниатюрных образцов приведены на рисунке 4.24.



а) эскиз миниатюрного образца из фрагмента чехла ОТВС



б) эскиз миниатюрного образца из фрагмента вытеснителя ОТВС

Рисунок 4.24. Эскиз и внешний вид испытательного образца

Для крепления миниатюрного образца плоской формы, изготавливаемых из чехла ОТВС, было использовано разработанное и запатентованное нами захватное приспособление (рисунок 4.25) [18]. А для фиксации образцов, изготавливаемых из вытеснителя ОТВС, были применены штатные захватные приспособления клиновидного типа испытательной машины Instron 5966. На подготовительном этапе в результате испытаний миниатюрных образцов, изготовленных из необлученных материалов (имитаторов), было установлено, что в рабочей части образца создается однородное напряженно-деформируемое состояние и разрушение происходит с образованием участка сосредоточенно-пластического деформирования.



а) захватное приспособление



б) фиксация захватного приспособления в испытательной машине

Рисунок 4.25. Миниатюрный образец для испытания на растяжение и его захватное приспособление

На рисунке 4.26 (см. стр. 176) представлены кривые «напряжение-деформация» миниатюрных образцов чехла ОТВС № 7. После отжига разница между значениями пределов текучести и прочности материала увеличивается, т.е. увеличивается коэффициент деформационного упрочнения ($\Delta\sigma/\Delta\epsilon$). Это способствует замедлению начала пластической неустойчивости и увеличению равномерной и общей деформации. Также после отжига заметно увеличивается деформация в области сосредоточенной дефор-

мации (образования «шейки»). Наглядным подтверждением этого эффекта являются фотографии разрушенных миниатюрных образцов после испытания на растяжение, представленные на рисунке 4.27.

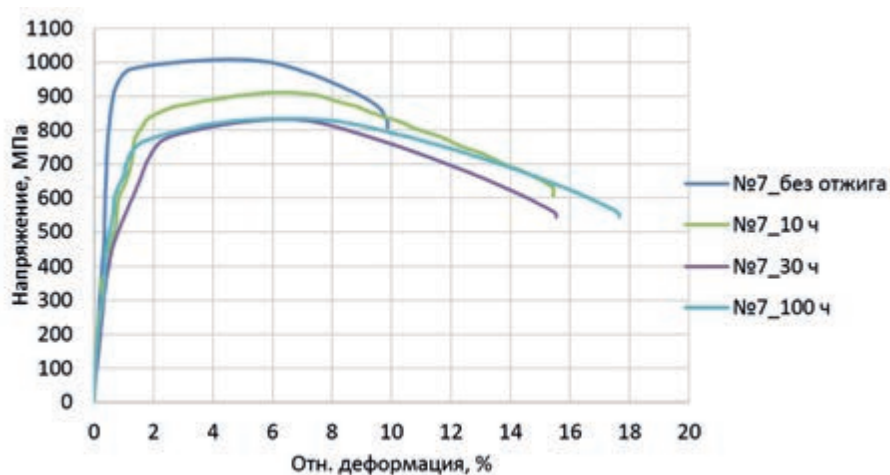


Рисунок 4.26. Кривые «напряжение-деформация» образцов чехла ОТВС № 7 после пострадиационного отжига



а) образец P-1_1.1, без термоиспытания



б) образец P-1_1.5, без термоиспытания



в) образец P-1_1.2, T=470 °C; t=10 ч



е) образец P-1_1.3, T=470 °C; t=30 ч



д) образец P-1_1.4, T=470 °C; t=100 ч

Рисунок 4.27. Внешний вид миниатюрных образцов из материала чехла ОТВС № 7 после испытания на растяжение

В процессе длительного изотермического отжига при температуре 470 °С снижение прочностных характеристик (предел прочности и предел текучести) и повышение пластических характеристик (сосредоточенная и общая деформация) материала чехла ОТВС № 7 из ферритно-мартенситной стали ЭП-450 подчиняются логарифмическому закону (рисунок 4.28). При этом после отжига между изменением твердости (HV0,2) и условным пределом текучести ($\sigma_{0,2}$) наблюдается линейная зависимость (формула (1), рисунок 4.29)

$$HV = 0,5878 \cdot \sigma_{0,2} - 145,95. \quad (1)$$

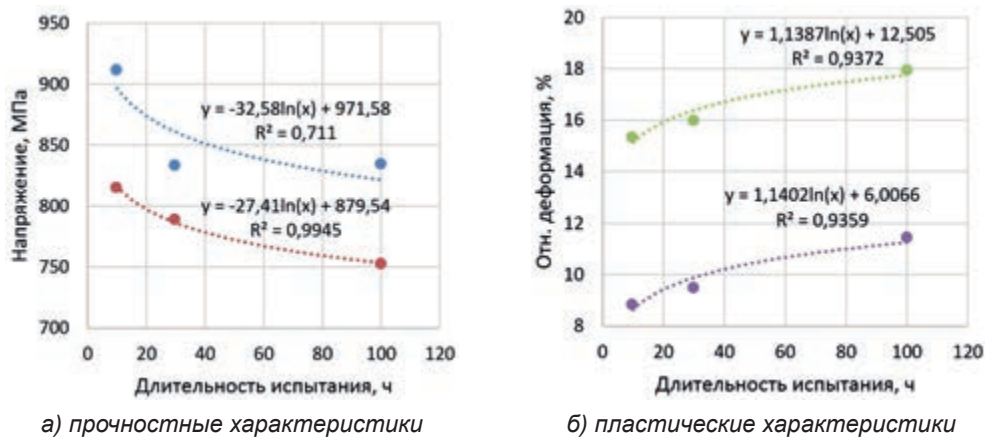


Рисунок 4.28. Зависимость прочностных и пластических характеристик чехла ОТВС № 7 от длительности термического испытания

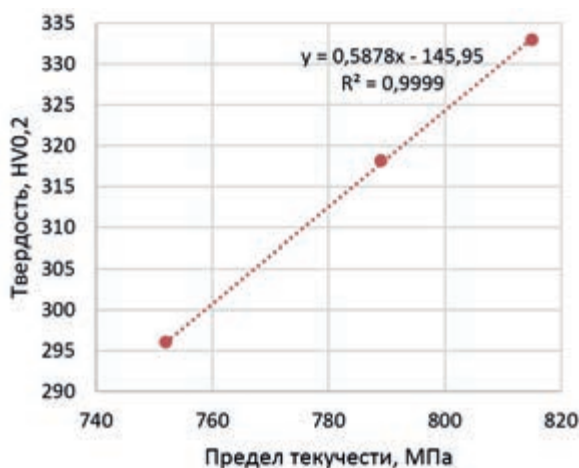


Рисунок 4.29. Зависимость твердости от предела текучести чехла ОТВС № 7 после отжига

В результате отжига фрагментов вытеснителя ОТВС Ц-1сп из аустенитной стали ЭИ-847, отобранных из различных отметок от ЦАЗ, также демонстрирует восстановление радиационного упрочнения облученного материала. Кривые «напряжение-

деформация», построенные в ходе испытаний миниатюрных образцов, фрагментов вытеснителя Ц-1сп представлены на рисунке 4.30.

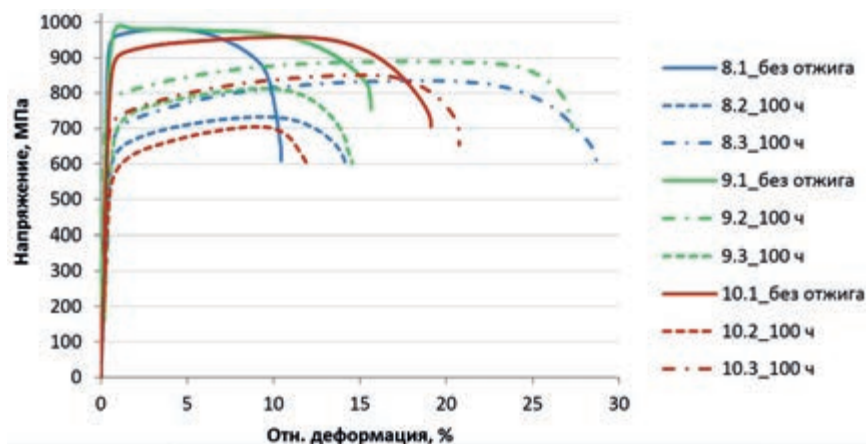


Рисунок 4.30. Кривые «напряжение-деформация» образцов вытеснителя ОТВС Ц-1сп после пострadiaционного отжига

Следует отметить, что одна третья часть миниатюрных образцов с уменьшенным сечением рабочей части (№ 8.2; № 9.3 и № 10.3) после отжига были разрушены вне зоны расчетной длины, т.е. в зоне перехода рабочей части к головке образца (рисунок 4.31). И, следовательно, показали заниженные значения прочностных и пластических характеристик. В связи с этим результаты испытаний данных образцов не были проанализированы.





ОТВС Ц-1сп «+175 мм» от ЦАЗ, №10

Рисунок 4.31. Внешний вид миниатюрных образцов из вытеснителя ОТВС после испытаний на растяжение

В таблице 4.11 и на рисунке 4.32 представлены результаты определения прочностных (предел прочности (σ_b) и условный предел текучести ($\sigma_{0,2}$)) и пластических (общая деформация (ϵ_o); равномерная деформация (ϵ_p) и сосредоточенная деформация (ϵ_c)) характеристик фрагментов вытеснителя ОТВС Ц-1сп, отобранных из различных отметок от ЦАЗ.

Таблица 4.11. Прочностные и пластические характеристики вытеснителя ОТВС Ц-1сп до и после пострadiaционного отжига

Номера образцов, (состояние)	Расстояние от ЦАЗ, мм	σ_b , МПа	$\sigma_{0,2}$, МПа	ϵ_o , %	ϵ_p , %	ϵ_c , %
№ 8.1 (до отжига)	-175	982	948	10	3,5	6,5
№ 8.3 (после отжига)		836	682	29	18,2	10,6
№ 9.1 (до отжига)	0	992	980	16	0,6	14,7
№ 9.2 (после отжига)		891	782	27	16,9	10,2
№ 10.1 (до отжига)	+175	959	891	19	10,4	8,2
№ 10.3 (после отжига)		852	713	21	14,4	6,7

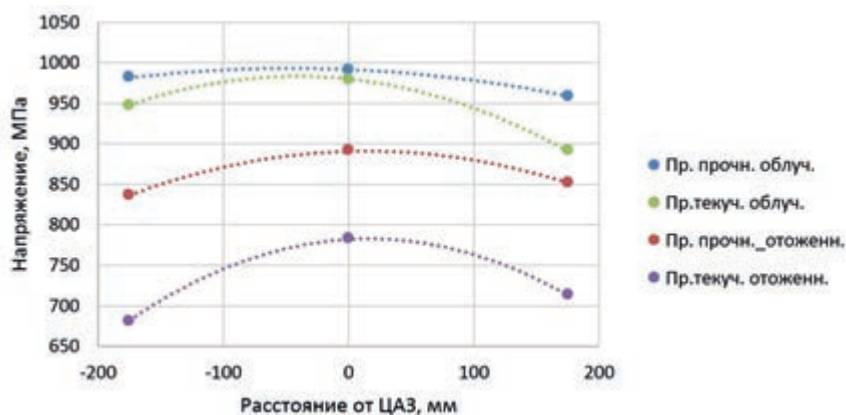
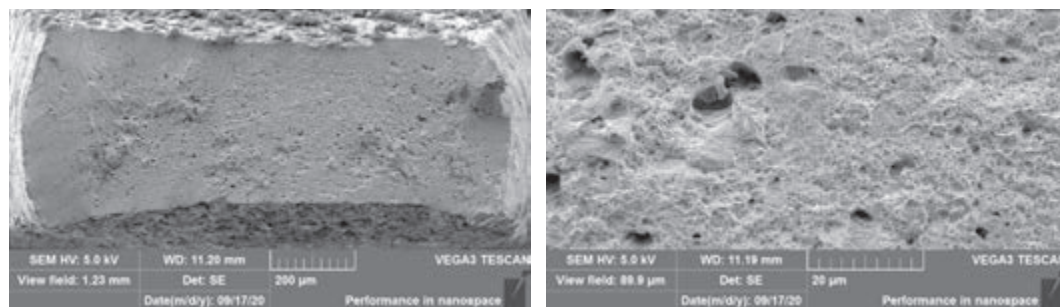


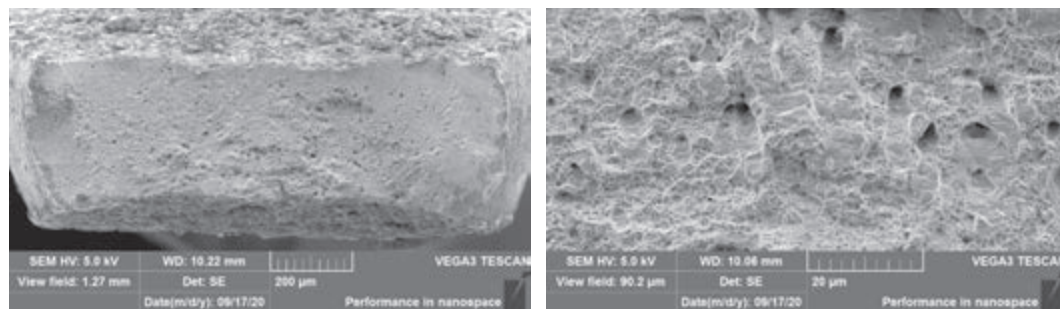
Рисунок 4.32. Зависимость предела прочности и предела текучести от расстояния относительно ЦАЗ вытеснителя ОТВС Ц-1сп до и после пострadiaционного отжига

После отжига облученного материала вытеснителя наблюдается снижение прочностных характеристик, при этом интенсивное снижение до 20–28% показывает предел текучести, а предел прочности снижается всего на 10–15%. Также заметно увеличение общей деформации в широком диапазоне.

Электронно-микроскопические изображения поверхности излома миниатюрных образцов вытеснителя ОТВС Ц-1сп до и после отжига представляют вязкий излом с характерным наличием ямок, являющиеся половинкой слившихся микропор, на дне которых нередко наблюдаются неметаллические включения (рисунок 4.33).



№ 9, до отжига



№ 9, после отжига 100 ч

Рисунок 4.33. Электронно-микроскопические изображения изломов миниатюрных образцов вытеснителя ОТВС Ц-1сп с ЦАЗ до и после отжига

Заключение

В 2018 году были начаты работы по характеристике фрагментов чехла и вытеснителя штатных ОТВС РУ БН-350 с высокими повреждающими дозами 50–71 сна, изготовленных из ферритно-мартенситной стали ЭП-450 и аустенитной стали ЭИ-847, соответственно.

В рамках работ по характеристике были получены данные о коррозионном повреждении поверхности фрагментов; для разрушающих методов контроля был произведен отбор образцов исследовательского и испытательного типов; выполнен микроструктурный анализ; определено распределение микротвердости в различных ориентациях, проведены механические испытания с применением методики миниатюрных образцов.

В 2019 году были выполнены кратковременные термические и механо-термические испытания с целью определения основных параметров коррозионных повреждений материала чехла штатных ОТВС РУ БН-350. В результате постэкспериментальных исследований определены зависимости формирования коррозионного слоя материала ОТВС от температуры термических испытаний. Также выполнена оценка коррозионного повреждения материала ОТВС в результате одновременного воздействия температуры и растягивающего напряжения.

Подробно результаты выполненных в 2018–2019 гг. работ описаны в промежуточных отчетах о научно-исследовательской работе [9, 14].

В рамках реализации задач, поставленных на 2020 г., были проведены длительные термические испытания в среде аргона фрагментов чехла и вытеснителя штатных ОТВС РУ БН-350 с продолжительностью 100 ч при температуре 470 °С, являющейся максимальной температурой в условиях сухого хранения ОЯТ. Для осуществления длительных испытаний облученных фрагментов была создано АУ. По результатам комплексного материаловедческого исследования проведена сравнительная оценка коррозионной стойкости фрагментов, установлен характер изменения твердости, прочностных и пластических характеристик и их взаимосвязь.

По результатам выполненных работ сделаны следующие выводы:

- чехол штатных ТВС реактора БН-350 из ферритно-мартенситной стали ЭП-450 после реакторного облучения и последующего мокрого хранения имеет высокую степень коррозионного повреждения, предположительно сформированных на этапе длительного контакта с водной средой. Соотношение основных структурных составляющих (феррит/сорбит) значительно отличается в зависимости от полученных доз;
- обнаружена различная степень коррозионной стойкости фрагментов штатных сборок № 6 (71517003188) и № 7 (Ц-1), изготовленных из одной и той же марки стали ЭП-450, причиной которой может являться различное соотношение структурных составляющих феррит/сорбит;
- пострadiaционный отжиг приводит к заметному ослаблению радиационного упрочнения, т.е. снижению прочностных характеристик (предел прочности и предел текучести) и повышению пластических характеристик (сосредоточенная и общая деформация) материала чехла из стали ЭП-450 и вытеснителя из стали ЭИ-847. Наблюдаемый эффект ослабления радиационного упрочнения подчиняется логарифмическому закону. При этом после отжига между изменением твердости ($HV_{0,2}$) и условным пределом текучести ($\sigma_{0,2}$) наблюдается линейная зависимость.

Полученные в ходе выполнения НИР закономерности изменения коррозионной стойкости, прочностных и пластических характеристик натуральных фрагментов штатных ОТВС РУ БН-350 могут быть использованы для обоснования продления программы сухого хранения ОЯТ РУ БН-350.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ К ГЛАВЕ 4

1. Состояние материала чехла отработавших ТВС реактора БН-350 в процессе длительного хранения / Кожухметов Е.А., Коянбаев Е.Т., Даулетханов Е.Д., Мухамеджанова Р.М., Уркунбай А.С., Сапатаев Е.Е. // Вестник НЯЦ РК.– 2019.– Вып. 4(80).– С.113-118.
2. Кислицын, С.Б. Формоизменения чехлов отработанных тепловыделяющих сборок реактора на быстрых нейтронах БН-350 // Материалы 8-ой международной конференции «Взаимодействие излучений с твердым телом», 23-25 сентября 2009, Минск, Беларусь.– С. 89-91.
3. Распухание и радиационная ползучесть аустенитной коррозионно-стойкой стали, облученной нейтронами в широком диапазоне дозы и температуры / Поролло С.И., Шулепин С.В., Иванов А.А. и др. // Атомная энергия.– 2011.– Т.110.– Вып. 4.– С. 207-214.
4. Оценка коррозионного состояния материала чехла отработавших ТВС реактора БН-350 после кратковременного термического воздействия / Кожухметов Е.А., Коянбаев Е.Т., Даулетханов Е.Д., Мухамеджанова Р.М., Уркунбай А.С., Сапатаев Е.Е. // Вестник НЯЦ РК.– 2020.– Вып. 1(81).– С.98-103.
5. Фазовая перекристаллизация и распухание ферритной нержавеющей стали, облученной в реакторе БН-350 / О.П. Максимкин, Л.Г. Турубарова, Т.А. Доронина, Э.С. Айтхожин // Известия НАН РК. Серия физико-математическая.– 2007.– № 6.– С. 18-25.
6. Особенности структуры и механических свойств чехлов отработавшей экранной сборки реактора БН-350 / Скаков М.К., Ситников А.А., Бакланов В.В., Яковлев В.И., Коянбаев Е.Т., Сапатаев Е.Е., Миниязов А.Ж., Кожахметов Е.А. // Вестник НЯЦ РК.– 2016.– Вып. 4(65).– С.6-10.
7. Послереакторные исследования влияния нейтронного облучения на свойства элементов активной зоны на примере аустенитной стали 09X16N15M3B / Кожухметов Е.А., Коянбаев Е.Т., Сапатаев Е.Е., Мухамеджанова Р.М., Бельдеубаев А.Ж. // Вестник КазНАЕН.– 2019. Вып. №1.– С.20-24.
8. ГОСТ 6032-2003. Стали и сплавы коррозионностойкие. Методы испытаний на стойкость к межкристаллитной коррозии. – Взамен ГОСТ 6032-89; введ. 2005-01-01.– М.: Издательство стандартов, 2004.– 27 с.
9. Исследования деградации структуры и свойств материалов штатных ОТВС реактора БН-350 в результате облучения и длительного изотермического воздействия: отчет о НИР (промежуточный) / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК ; рук. Е.Е. Сапатаев.– Курчатова, 2019.– 22 с.– ГР № 0118РК01127.– Инв. № 0219РК00329.
10. Петров, П.Н. Коррозионно-механическое разрушение металлов и сплавов / П.Н. Петров, Н.Г. Сопрунюк; отв. ред. Р.К. Мелехов.– Киев: Наукова думка, 1991.– 216 с.

11. Коррозионное растрескивание алюминиевых сплавов и нержавеющей сталей: ключевые особенности и методы испытаний (обзор) / П.Ф. Киричок // Труды ВИАМ.– № 7 (67).– 2018.– С. 106-116.
12. Koyanbayev Ye.T., Skakov M.K., Ganovichev D.A., Martynenko Ye.A., Sitnikov A.A. Simulation of the Thermal Conditions of Cask with Fuel Assemblies of the BN-350 Reactor for Dry Storage // Science and Technology of Nuclear Installations.– Vol. 2019.– Article ID 3045897.
13. Каменичный И.С. Спутник термиста.– Киев: Техніка, 1978.– 230 с.
14. Исследования деградации структуры и свойств материалов штатных ОТВС реактора БН-350 в результате облучения и длительного изотермического воздействия: отчет о НИР (промежуточный) / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК ; рук. Е.Е. Сапатаев.– Курчатов, 2018.– 38 с.– ГР № 0118РК01127.– Инв. № 0218РК00098.
15. Радиационная повреждаемость и работоспособность конструкционных материалов / А.Д. Амаев, А.М. Крюков, И.М. Неклюдов [и др.]; под.ред. А.М. Паршина и П.А. Платонова.– СПб.: Политехника, 1997.– 312 с.
16. Цай К.В. Особенности радиационного повреждения стали 12Х18Н10Т, облученной до доз 26-59 сна в реакторе БН-350 // Доклады НАН РК. Физика.– 2009.– № 3.– С. 21-24.
17. Kumar K., Pooleery A., Madhusoodanan K., Singh R.N., Chakravartty J.K., Dutta B.K., Sinha R.K. Use of Miniature Tensile Specimen for Measurement of Mechanical Properties // Procedia Engineering.– 2014.– № 86.– P. 899-909.
18. Патент РК на изобретение №32350. Захват для крепления микрообразцов при испытании на растяжение / В.В. Бакланов, Е.Т. Коянбаев, М.К. Скаков [и др.]– № 32350; опубл. 31.08.2017, Бюл. №16.

Г Л А В А 5

ИЗУЧЕНИЕ СВОЙСТВ ПРОТОТИПА КОРИУМА РАЗЛИЧНЫХ СОСТАВОВ

*Кукушкин И.М., Бакланова Ю.Ю., Коянбаев Е.Т., Барбатенков Р.К., Мухамедова Н.М.,
Букина О.С., Семенина А.В.*

Введение

При проектировании ядерных энергетических установок и систем обеспечения их безопасности уже входит в практику применение подхода, при котором рассматривается возможность развития тяжелой аварии. В соответствии с этим подходом необходимым атрибутом действующей или проектируемой ядерной установки является обеспечение ее устройствами локализации последствий тяжелой аварии. Владельцы ядерных энергетических установок (ЯЭУ) проводят частные или объединенные исследования по разработке приспособлений и конструкций, выполняющих защитные функции при локализации аварийных ситуаций. В большинстве случаев, в качестве сценариев развития аварийной ситуации принимаются сценарии тяжелых аварий, произошедших на реакторах схожего типа. В практику проектирования и эксплуатации ЯЭУ уже вошло прогнозирование вариантов развития аварий и расчетное обоснование сценариев их локализации с применением расчетных кодов. Однако, разнообразие и степень применимости методов расчетного моделирования процессов, имеющих место при развитии аварии, ограничены из-за необходимости их привязки к конкретной конструкции реактора. Систематизация применяемых экспериментальных методов и получаемых при их реализации данных по свойствам кориума будет иметь практическую ценность для разработки стратегий обеспечения безопасности ЯЭУ.

Сплав топливных и конструкционных материалов, образующийся в процессе тяжелой аварии на ядерном реакторе (кориум), не обладает однозначностью физических свойств, поскольку они зависят от конкретного сценария протекания аварии, исходных событий, конструкции реакторной установки и т.д. Потребность в знании тех или иных свойств такого материала возникает как на этапе обоснования безопасности реакторных установок и анализе последствий, так и на этапе разработки мер снижения последствий тяжелой аварии или ее ликвидации.

Таким образом, актуальность работ обусловлена потребностью в экспериментально определенных значениях свойств прототипа кориума для валидации расчетных кодов, используемых при прогнозировании сценариев аварий ядерных реакторов и обращении с затвердевшим расплавом активной зоны аварийной реакторной установки.

Научная новизна выполняемых работ состоит в том, что, исходя из анализа возможных реальных ситуаций на ядерном реакторе, определяется подбор характеристик прототипа кориума (состав, однородность, равновесность, напряженность структуры, пористость и др.), наиболее соответствующих конкретному сценарию. Экспериментальное получение образцов кориума и исследование их свойств позволяют получить наборы или упорядоченные матрицы данных по основным химическим, теплофизическим и другим свойствам прототипов. Полученные данные востребованы при решении проблемы обеспечения безопасности ядерных реакторов, создании технологий локализации тяжелых аварий, создании инструментов по обращению с затвердевшим кориумом и т.п.

5.1 Методика и методы исследований

Основные этапы исследования

Исследовались свойства специально изготовленных образцов кориума: с разной степенью окисленности при одинаковом соотношении U/Zr и образцы с идентичной степенью окисленности, но разным соотношением U/Zr. Методика исследования прототипного (модельного) кориума заключается в:

1. подготовке к высокотемпературным экспериментам: нанесении защитных покрытий на плавильный объем, разработке схемы загрузки плавильного объема и регламента нагрева шихты до ее расплавления;
2. проведении высокотемпературных экспериментов по плавлению композиций конструкционных и топливных материалов, характерных для состава кориума легководных реакторов;
3. определении плотности;
4. исследовании структурно-фазового состава для того, чтобы получить максимально схожие по структуре образцы;
5. определении теплопроводности, температуропроводности и теплоемкости образцов.

Для получения данных о свойствах прототипного кориума, применяются такие методы как рентгенофазовый анализ (РФА), измерения объемной плотности, метод Паркера для определения теплофизических свойств (ТФС) кориума.

Получение образцов модельного кориума

Модельный кориум представляет собой расплава активной зоны легководного реактора, то есть сплав компонентов топлива (UO_2), оболочки твэлов (Zr), продуктов парациркониевой реакции (ZrO_2) и поглощающих стержней (B_4C) (рисунок 5.1 на стр. 186).

Низкоокисленный кориум принят для мольного соотношения кислорода и других компонентов менее 50% ($C=0$ и $C=30$), а высокоокисленный - 50% и более ($C=50$ и $C=70$). Соотношение урана к цирконию сохраняется для всех составов – 0,87%.

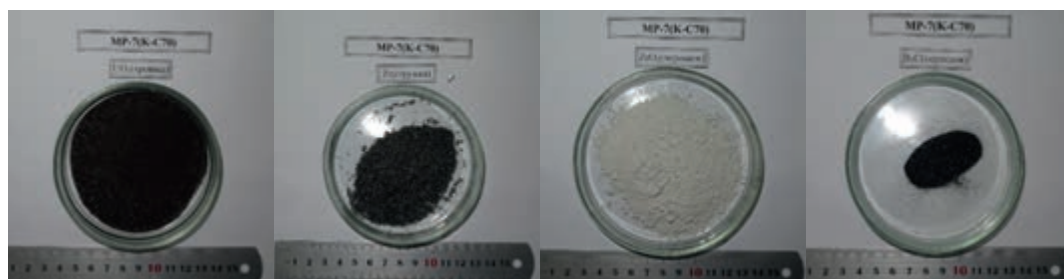


Рисунок 5.1. Элементы шихты модельного корунда, получаемого на ВЧГ-135

Процесс получения модельного корунда реализуется на стенде индукционного нагрева ВЧГ-135 (рисунок 5.2). Стенд создан на базе высокочастотного электролампового генератора ВЧГ1-60/0,066, предназначен для выполнения высокотемпературного нагрева (до $\sim 3000\text{ }^{\circ}\text{C}$) образцов небольших размеров.



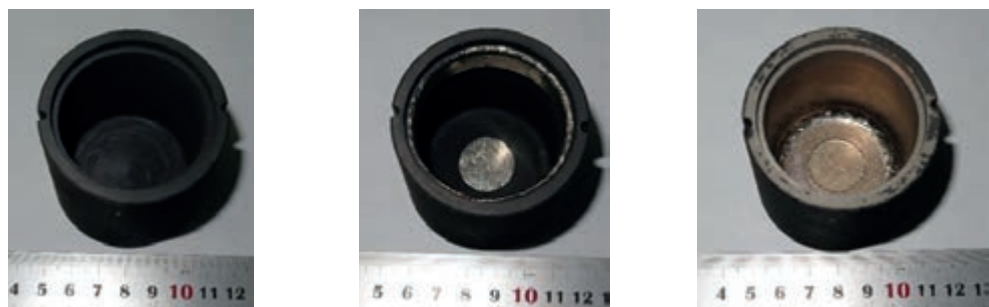
1 – генератор ВЧГ1-60/0,066, 2 – водоохлаждаемая рабочая камера

Рисунок 5.2. Стенд высокотемпературных испытаний материалов ВЧГ-135

Рабочая камера стенда оснащена резервными электрическими проходками для реализации различных электроизмерений в процессе эксперимента. Предусмотрена также возможность видеосъемки процесса нагрева и охлаждения образца через смотровое окно в крышке рабочей камеры.

Информационно-измерительная система (ИИС) установки позволяют осуществлять непрерывную регистрацию данных, поступающую от восьми термопар и трех пирометров, регистрировать давление среды в полости рабочей камеры, давление воды в индукторе и степень ее нагрева в процессе эксперимента, регистрировать и отображать значения напряжения и тока на индукторе, рассчитывать активную мощность в системе индуктор-загрузка.

В качестве плавильных объемов использовались графитовые тигли. Перед проведением экспериментов по получению кориума, проводятся эксперименты по нанесению покрытий из карбида циркония (рисунок 5.3). В экспериментах по получению кориума со степенью окисленности более $C=70$ предварительное получение покрытия не требуется, так как количество загружаемого карбида циркония достаточно для нанесения его на стенки графитового тигля.



а) без покрытия

б) с циркониевой вставкой перед нагревом в камере ВЧГ-135

в) с нанесенным защитным циркониевым покрытием

Рисунок 5.3. Графитовый тигель на разных этапах экспериментов по нанесению защитного покрытия

Согласно разработанной схеме, представляющей собой порядок размещения компонентов шихты в графитовом тигле и способ размещения термоэлектрических преобразователей, комплектуется экспериментальная сборка. Процесс загрузки шихты в тигель представлен на рисунке 5.4. Для исключения прямого контакта графита с шихтой используется танталовая вставка.



а) шихта для получения кориума

б) процесс загрузки шихты

в) внешний вид тигля для проведения экспериментов

Рисунок 5.4. Основные моменты загрузки графитового тигля ВЧГ-135 шихтой

После окончания загрузки шихты экспериментальная сборка размещается в центре индуктора рабочей камеры (рисунок 5.5 на стр. 188). Верхняя и боковая поверхности

тигельной сборки закрываются теплоизоляцией из графитового войлока. Для предотвращения межвиткового замыкания индуктора на внешней границе теплоизоляции устанавливается втулка из стеклоткани, пропитанная окисью циркония на силикатной связке. Экспериментальная сборка устанавливается на подставку из пенографита (для снижения утечек тепла со дна тигля).



Рисунок 5.5. Вид экспериментальной сборки в рабочей камере стенда

В качестве основных средств измерения температуры в экспериментах используются термопары ВР-5/20 (вольфрам-рениевые термопары) градуировки А-1. Данные преобразователи являются термопарами корпусного типа, имеют защитный чехол из тантала и изолятор из оксида бериллия. Диапазон измерения температуры термопарами ВР-5/20 составляет от 1000 °С до 2500 °С.

Для безконтактного измерения температуры применяется три типа пирометров:

1) пирометр спектрального отношения МІКRON M770S:

- диапазон температур от 1000 °С до 3000 °С;
- предел погрешности не более $\pm 0,5\%$;
- регулируемое фокусное расстояние,

2) пирометр с видеокамерой ІМРАС 140:

- диапазон температур от 900 °С до 3300 °С;
- предел погрешности не более $\pm 1,0\%$;
- диапазон ϵ от 10% до 100%, шаг 0,1%;
- спектральный диапазон от 0,7 мкм до 1,1 мкм;
- видео регистрация 628 \times 582 пик,

3) пирометр спектрального отношения МЕТІS M3:

- диапазон температур от 800 °С до 3000 °С;
- предел погрешности не более $\pm 1,5\%$;
- показатель визирования 1/50.

Основные функции данных пирометров заключаются в получении дополнительных данных о температуре в графитовом тигле, на поверхности образцов (MICRON M770S, METIS M3) и видеозаписи процесса плавления (ИРАС 140).

После установки экспериментальной сборки, реакционная камера вакуумируется и заполняется аргоном. Осуществляется нагрев до температуры, обеспечивающих полное расплавление компонентов шихты.

Измерения объемной плотности

Для оценки плотности образцов модельного кориума необходимо знать его объем и массу. Масса образцов определяется путем взвешивания на аналитических весах. Объем образцов модельного кориума определяется на образцах правильной геометрической формы измерениями линейных параметров с помощью штангенциркуля. Плотность находится по известной формуле:

$$\rho = \frac{m}{V}, \quad (1)$$

где m – масса образца;
 V – объем образца.

Рентгенофазовый анализ

Фазовый анализ образцов осуществляется на дифрактометрической системе Emurean. Рентгенографирование проводится в медном излучении.

Обработка дифрактограмм проводилась посредством программы «HighScore». Процедуры обработки исходных дифрактограмм следующие:

- 1) отделение и удаление линий, соответствующих излучению $K\alpha_2$;
- 2) определение фона;
- 3) поиск пиков;
- 4) сглаживание низкочастотного шума профиля по 7 точкам;
- 5) подгонка расчетного профиля по всему диапазону углов дифрактограммы с шагом $\sim 40^\circ 2\theta$, с ограничением диапазона интенсивностей на 50% от максимальной интенсивности;
- 6) анализ и сопоставление пиков дифрактограмм с эталонными карточками доступных баз данных.

Для идентификации фазового состава использовалась база данных Crystallography Open Database [1] и база данных PDF-2 [2]. Количественный состав определялся в процедуре полуколичественного анализа ПО «HighScore» по методу корундовых чисел (RIR).

Определение теплофизических свойств на УТФИ-2

Определение ТФС модельного кориума осуществляется на лабораторной установке УТФИ-2. Проведение измерений свойств твердых материалов в диапазоне температур от комнатной до 800 °С выполняется в вакууме и инертной газовой среде методом

мгновенного источника тепла (метод «вспышка») на образцах в форме дисков с соотношением толщины к диаметру 1:3.

Конструктивно установка состоит из приборной стойки ИИС, измерительной ячейки (кондуктиметра), вакуумной камеры с нагревательным узлом и системы регистрации режимов работы нагревательного узла. Вакуумная камера с системой вакуумирования и заполнения инертным газом, силовая часть и измерительная схема нагревательного узла собраны в один функциональный узел на базе вакуумного универсального поста ВУП-1. Внешний вид установки приведен на рисунке 5.6.



Рисунок 5.6. Внешний вид установки «УТФИ-2»

В приборной стойке ИИС расположены блок формирования электрического импульса и функциональные узлы измерительной системы. Изменение температуры на тыльной поверхности образца выполняется малоинерционной хромель-алюмелевой термопарой выполненной из термопарного кабеля КТМС-1. Сигнал с термопары через нормализатор сигналов типа DSCA40-08 посредством согласующей платы PCLD-8710 поступает на АЦП РСІ-1716. Источник формирования импульсов формирует на нагревателе электрический импульс длительностью от 5 мс до 10 мс. В процессе измерений производится регистрация сигналов с датчика тока и датчика напряжения, расположенных в цепи импульсного нагревателя. Отображение и регистрация измерительной информации производится разработанным программным обеспечением в ПЭВМ оператора.

Метод определения ТФС, реализуемый на установке, основывается на методе «вспышка» [3]. Сущность метода заключается в нагреве одной из поверхностей плоского образца кратковременным воздействием теплового импульса и регистрации изменения температуры во времени на противоположной поверхности образца. Теория метода основывается на использовании распределения температуры в плоском теплоизолированном образце, начальная температура которого условно принята равной

нулю [4]. Уравнение распределения температуры (формула (2)) для метода вспышки в бесконечной пластине выглядит следующим образом

$$T(x, \tau) = \frac{Q'}{C_p \rho L} \left[1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \cos \frac{n\pi x}{L} \exp \left(-\frac{n^2 \pi^2 \alpha \tau}{L^2} \right) \right], \quad (2)$$

где Q' – поверхностная плотность энергии импульса (Дж/м²);

τ – время достижения заданного значения температуры;

α – коэффициент температуропроводности;

C_p – удельная теплоемкость;

ρ – плотность материала;

L – толщина образца.

На поверхности $x = L$ изменение температуры во времени запишется формулой (3)

$$T(L, \tau) = \frac{Q'}{C_p \rho L} \left[1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp \left(-\frac{n^2 \pi^2 \alpha \tau}{L^2} \right) \right], \quad (3)$$

При введении безразмерных переменных $\theta(L, \tau) = T(L, \tau) / T_M$, $\xi = \pi^2 \alpha \tau / L^2$ формула (3) преобразуется к виду

$$\theta(L, \tau) = \frac{Q'}{C_p \rho L} [1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp(-n^2 \xi)], \quad (4)$$

где T_M – максимальная температура на тыльной поверхности образца.

Используя уравнение формулы (4), можно получить формулу для определения коэффициента температуропроводности α . Оптимальным условием является равенство $T/T_M = 0,5$. При $\theta = 0,5$ значение $\xi = 1,38$, а величина коэффициента температуропроводности определяется формулой (5)

$$\alpha = 1,38 L^2 / (\pi^2 \tau_{0,5}), \quad (5)$$

где $\tau_{0,5}$ – время, за которое поверхность образца $x = L$ нагревается до половины максимальной температуры.

Удельная теплоемкость находится из формулы (6)

$$C_p = \frac{Q'}{\rho \cdot L \cdot T_M}. \quad (6)$$

Теплопроводность находится по известной формуле (7)

$$\lambda = \alpha \cdot C_p \cdot \rho, \quad (7)$$

Поверхностная плотность энергии импульса определяется формулой (8)

$$Q' = Q / S, \quad (8)$$

где Q – энергия теплового импульса, переданная от нагревателя к образцу;

S – площадь поверхности образца, м².

На рисунке 5.7а (см. стр. 192) представлена типовая термограмма определения значений величин T_M и $\tau_{0,5}$, используемых для расчета ТФС по формулам (6) и (7). На рисунке 5.7б (см. стр. 192) представлена схема измерительной ячейки, реализующей метод измерений.

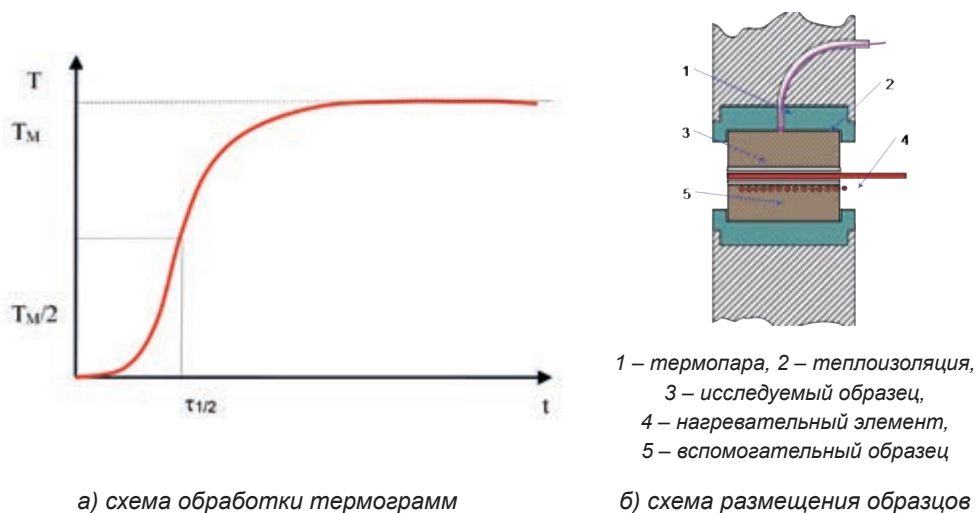


Рисунок 5.7. Метод определения ТФС

Для практического расчета теплопроводности исследуемого образца используется метод введения поправочных коэффициентов, регулирующих не идеальность условий теплообмена при реализации метода Паркера в конкретной установке. Поправочные коэффициенты определяются по результатам измерений образцов с известными теплофизическими коэффициентами.

Энергия теплового импульса на нагревателе рассчитывается по формуле (9)

$$Q = \frac{1}{2} \cdot \left(\int_{\tau_i} i(\tau) \cdot u(\tau) d\tau \right), \quad (9)$$

где $1/2$ – коэффициент, учитывающий наличие двух образцов;

$i(\tau)$ и $u(\tau)$ – мгновенные значения силы тока и падения напряжения на нагревателе в течении времени подачи импульса τ_i .

Расчет значения интеграла $Q_{им}$, выполняется с помощью программы Excel по результатам регистрации мгновенных значений $i(\tau)$ и $u(\tau)$.

Результирующее значение удельной теплоемкости исследуемого образца с учетом поправочного коэффициента рассчитывается по формуле (10)

$$C^* = K_c \cdot C_{изм}, \quad (10)$$

где поправочный коэффициент K_c рассчитывается по формуле (11)

$$K_c = C^*/C, \quad (11)$$

где C^* и C – истинное и рассчитанное по формуле (12) с использованием (10) и (11) значения удельной теплоемкости для калибровочного образца.

Расчет температуропроводности проводится

$$\alpha_{изм} = \frac{0,139 \cdot d^2}{\tau_{1/2}}, \quad \tau_{1/2} = t_{1/2} - t_{имп}, \quad (12)$$

где d – толщина образца, мм;

$t_{1/2}$ – момент времени достижения половины максимальной температуры, с;
 $t_{\text{имп}}$ – средневзвешенное по мгновенной электрической мощности на нагревателе значение момента времени подачи импульса, с.

Поправочный коэффициент для значений температуропроводности определяется по формуле (13)

$$K_{\alpha} = \frac{\alpha^*}{\alpha_{\text{изм}}}, \quad (13)$$

где α^* и $\alpha_{\text{изм}}$ – истинное и рассчитанное по измерениям значения температуропроводности калибровочного образца.

Результирующее значение температуропроводности исследуемого образца с учетом поправочного коэффициента рассчитывается по формуле (14)

$$\alpha^* = K_{\alpha} \cdot \alpha_{\text{изм}}, \quad (14)$$

Значение коэффициента теплопроводности исследуемых образцов рассчитывается согласно уравнению формулы (15)

$$\lambda^* = \alpha^* \cdot C^* \cdot \rho, \quad (15)$$

5.2 Получение корнума разной степени окисленности

Для получения прототипа корнума использовался композиционный состав из UO_2 , ZrO_2 , Zr и V_4C с разной степенью окисленности. Компоненты исходной шихты и их соотношение моделируют состав топливных и конструкционных материалов активной зоны легководного реактора. Выбранный состав экспериментальной сборки приведен в таблице 5.1.

Таблица 5.1. Состав загружаемой шихты

№ п/п	Наименование	Масса загрузки, г			
		C=0	C=30	C=50	C=70
1	Тигель графитовый	119,91	123,31	122,55	130,11
2	Крышка графитовая	92,85	95,62	92,65	94,95
3	UO_2 (крошка)	290,3	150,00	273,2	125,00
4	V_4C (порошок)	2,85	1,49	2,8	1,29
5	ZrO_2	-	23,68	66,34	46,00
6	Zr (стружка)	80,24	9,91	80,24	8,22
7	Zr (СТ110)	32,24	32,2	67,73	-
8	ТС-1	-	10,76	-	10,44
9	ТС-2	-	10,98	-	10,52
10	Общая	617,16	436,17	614,68	405,13
11	Материал тигля	Графит МГ-1			
12	Рабочая среда в камере	Аргон 1ата			

Получение расплавов заданного состава осуществлялось, как говорилось ранее, на стенде ВЧГ-135. Схема расположения датчиков температуры в экспериментальных

сборках, характерная для всех экспериментов по получению кориума, приведена на рисунке 5.8.

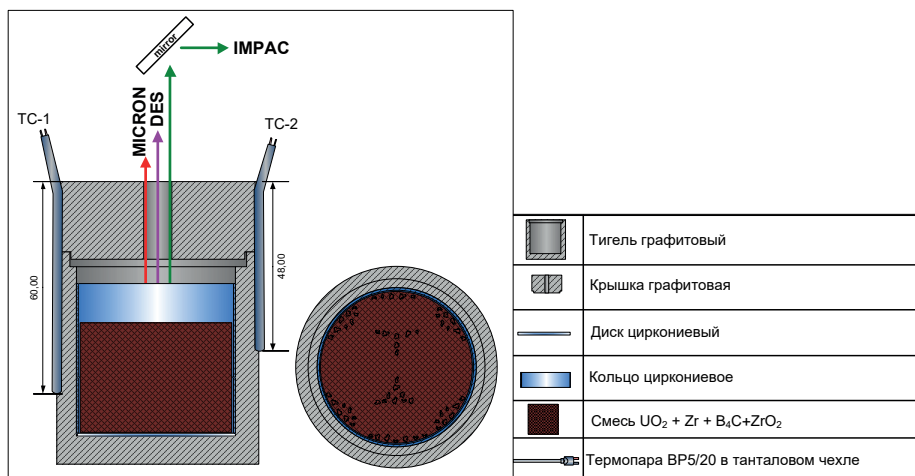
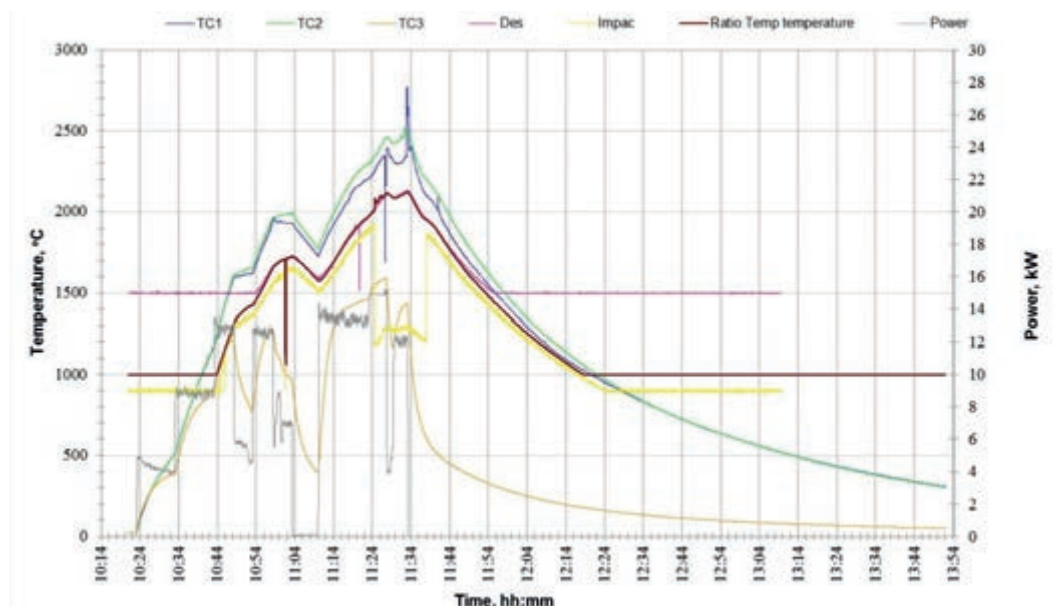
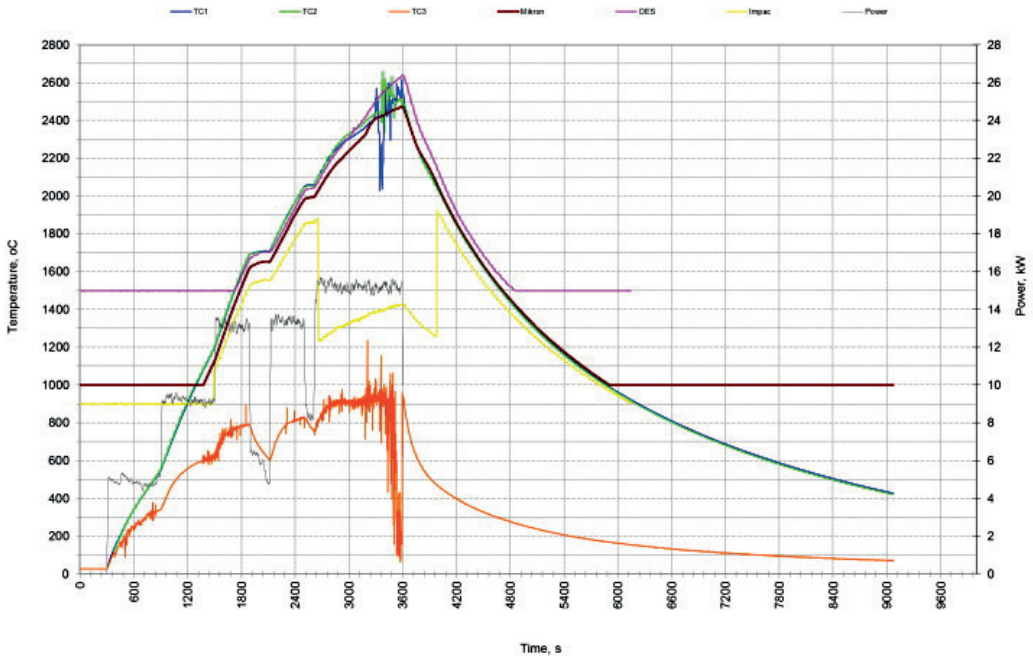


Рисунок 5.8. Принципиальная схема загрузки

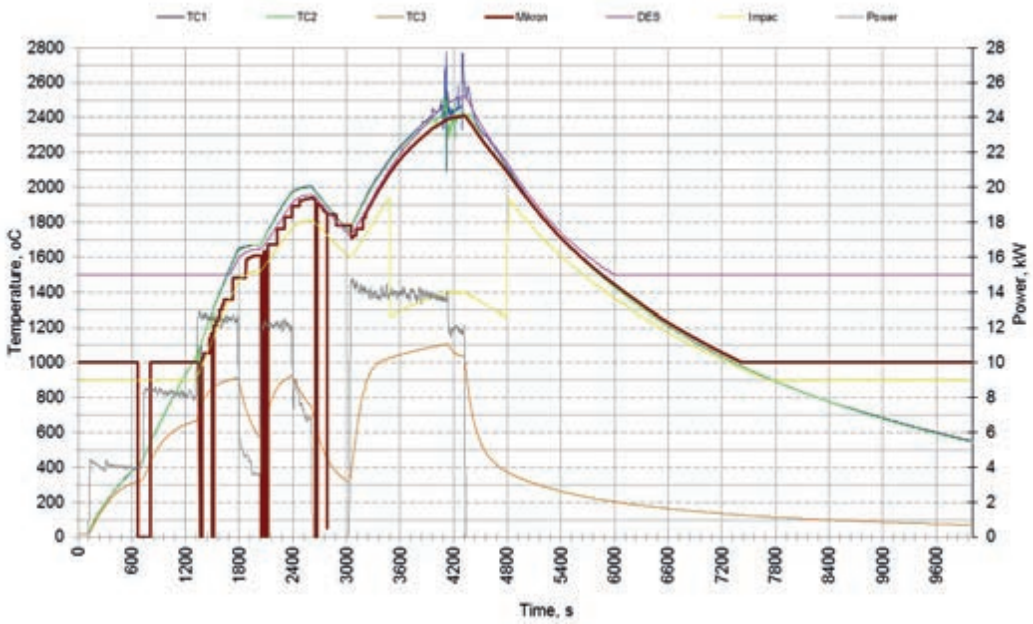
Нагрев компонентов шихты выполнялся до температур 2300–2450 °С. Контроль за температурой до 2200 °С осуществлялся по показаниям термопар, а выше, когда высока вероятность выхода из строя термопар, – по показаниям пирометра Mikron (Ratio Temp temperature). Реализуемые диаграммы нагрева и подачи электрической мощности для каждого эксперимента по получению модельного кориума, представлены на рисунке 5.9 (см. стр. 194 - 196).



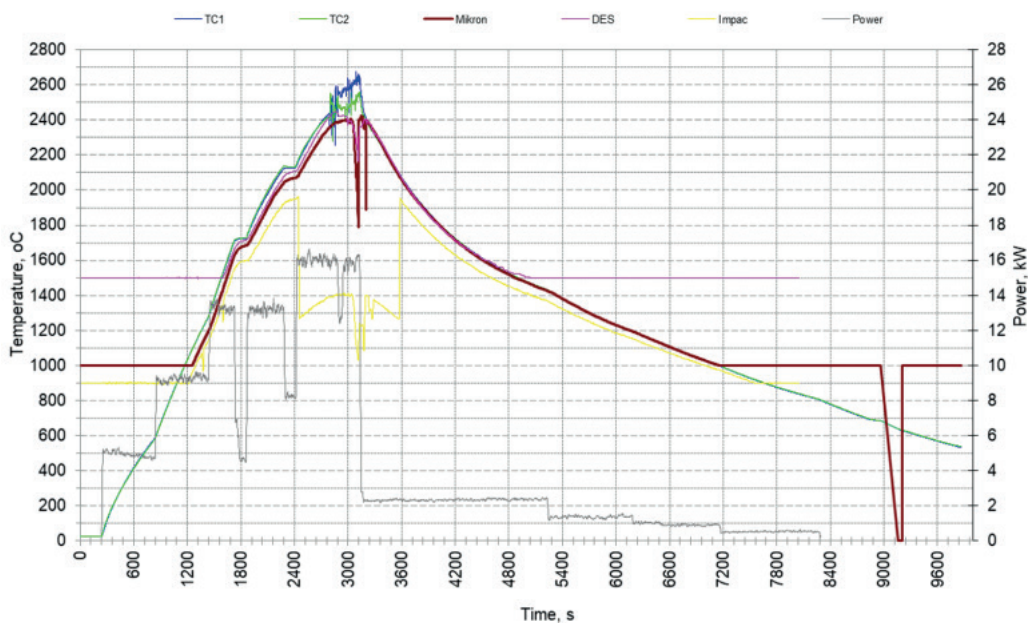
C=0



$C=30$



$C=50$



$C=70$

Рисунок 5.9. Диаграммы изменения температуры и мощности экспериментов

В результате высокотемпературных экспериментов на стенде ВЧГ-135 было получено 4 слитка кориума $C=0$, $C=30$, $C=50$ и $C=70$ с соответствующей массовой концентрацией кислорода в составе. Внешний вид слитка представлен на рисунке 5.10.

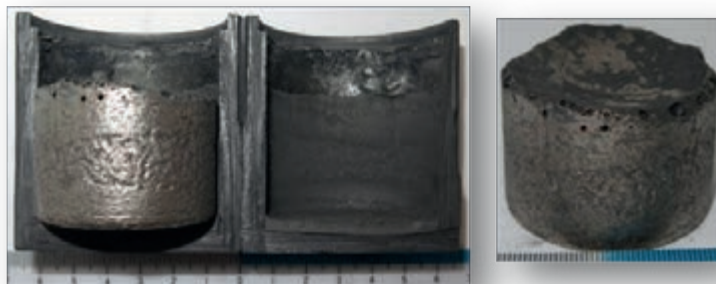


Рисунок 5.10. Внешний вид полученного слитка кориума

5.3 Плотность кориума

Значения объемной плотности, в зависимости от степени окисленности, были ожидаемы: за счет отсутствия оксида циркония образцы кориума низкой окисленности имеют более плотную и менее пористую структуру (таблица 5.2).

Таблица 5.2. Результаты определения плотности образцов, г/см³

Степень окисленности	Образец 1	Образец 2	Образец 3	Образец 4	Образец 5
C=0	9,08 ± 0,12	7,86 ± 0,14	8,87 ± 0,24	9,25 ± 0,24	6,78 ± 0,17
C=50	6,93 ± 0,15	7,95 ± 0,25	6,71 ± 0,15	7,34 ± 0,22	6,40 ± 0,20

5.4 Структурно-фазовый состав кориума

Для проведения РФА образцов кориума высокой и низкой степени окисленности были отобраны по две порции материалов из верхней и нижней частей каждого слитка. Материал отбирался в виде фрагментов кориума, которые затем измельчались. На рисунке 5.11 приведены дифрактограммы порошковых образцов кориума высокой степени окисленности, иллюстрирующее общую однородность фазового состава материала в различных областях слитка.

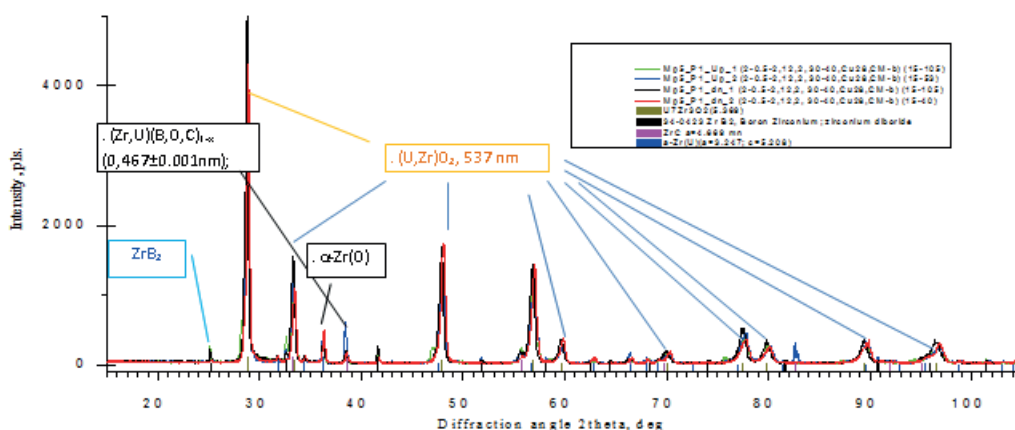


Рисунок 5.11. Наложение дифрактограмм четырех образцов кориума из верхней и нижней частей слитка

Как показал анализ дифрактограмм, основными компонентами фазового состава кориума является твердый раствор $(U, Zr)O_2$ с ГЦК решеткой двуокиси урана, металлическая фаза на основе α -модификации циркония $\alpha-Zr(O, U, \dots)$ и фаза переменного состава с ГЦК решеткой карбида циркония, общую формулу которой можно представить в виде $Zr(C, O, B)_{1-x}$. Ряд линий малой интенсивности позволяет также идентифицировать фазу ZrB_2 .

Стехиометрический состав твердого раствора $(U, Zr)O_2$ может быть определен оценочно, линейной интерполяцией значений периодов решеток ГЦК-фаз UO_2 (0,547 нм) и ZrO_2 (0,513 нм) к периоду решетки твердого раствора, определяемому по дифрактограммам. При выполнении такой оценки было определено, что основной фазой является твердый раствор с параметром решетки около $(0,537 \pm 0,003)$ нм, соответствующий стехиометрическому составу $U_{-0,7}Zr_{-0,3}O_2$.

Фаза α -Zr(O,U,...) на основе кристаллической модификации α -циркония с гексагональной плотноупакованной кристаллической решеткой имеет увеличенные параметры решетки $a=(0,325 \pm 0,002)$ нм, $c=(0,521 \pm 0,002)$ нм, $a/c=(0,624 \pm 0,002)$ по сравнению с чистым цирконием $a=0,3232$ нм, $c=0,5147$ нм, $a/c=(0,628 \pm 0,0002)$, что позволяет предположить образование твердого раствора на его основе с растворенными атомами урана, кислорода и др. α -Zr(O,U,...). Содержание этой фазы почти одинаково во всех образцах.

Линии фазы ZrB_2 имеют значительную интенсивность, позволяющую идентифицировать уверенно все линии в исследуемом диапазоне углов. Интенсивность линий этой фазы для трех образцов в 3–4 раза выше, чем для образцов слитка кориума после эксперимента MP-3_2, что говорит о высоком объемном содержании фазы ZrB_2 в их составе. В то же время в одном из образцов из нижней части слитка (MP-5_P1_dn2) содержание фазы ZrB_2 значительно ниже, чем в остальных. Это может быть следствием неоднородного распределения выделений данной фазы в объеме слитка.

Присутствие фазы переменного состава $(Zr,U)(C,B,O)_{1-x}$ с ГЦК решеткой карбида циркония говорит о повышенной концентрации углерода в расплаве. Количество данной фазы не велико. Наибольшее количество $(Zr,U)(C,B,O)_{1-x}$ содержится в одном из образцов верхней области разреза слитка. Также в образце верхней части слитка (MP-5_P1_up1) было обнаружено присутствие нерастворенной двуокиси урана.

На рисунке 5.12 приведено наложение усредненных дифрактограмм кориумов высокой и низкой степени окисленности, из которого видно отличие составов твердых растворов $(U,Zr)O_2$. Образцы кориума низкой степени окисленности были изготовлены из дисперсного материала, полученного в результате сверлений слитка, поэтому в их составе отсутствует α -U.

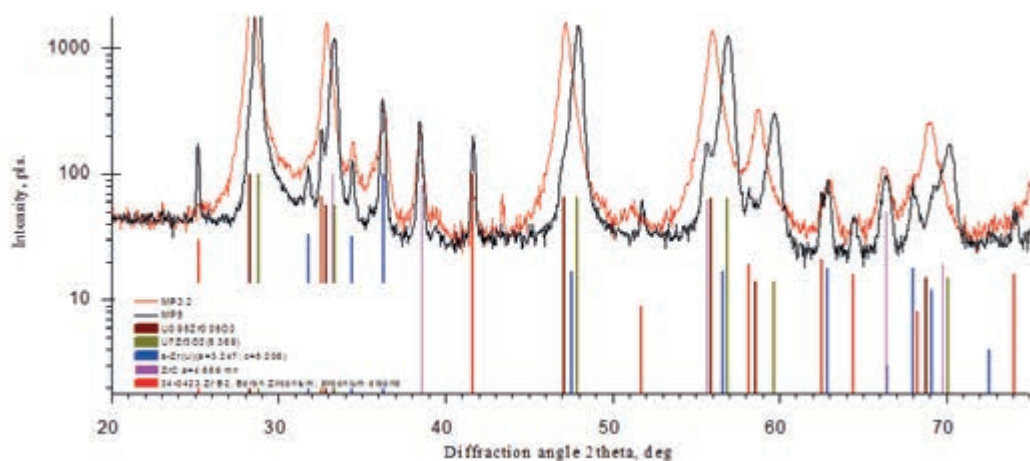


Рисунок 5.12. Наложение усредненных дифрактограмм образцов кориума высокой и низкой степени окисленности

Расчеты фазового состава, основанные на сведениях об элементных составах исходной шихты кориумов и результатах качественного XRD фазового анализа, приведены

в таблице 5.3. При расчетах учитывался стехиометрический состав твердых растворов (U,Zr)O₂. Количество фаз ZrC и ZrB₂ рассчитано исходя из содержания В₄С. Количество α-U введено оценочно. Расчет концентрации x кислорода в фазе α-Zr(O) произведен по балансу его содержания в исходной загрузке и твердых растворах.

Таблица 5.3. Результаты расчета количественного состава фаз кориума двух типов

Тип кориума	Фазовый состав (мол.%)				
	(U,Zr)O ₂	ZrC	ZrB ₂	α-U	a-Zr(O _x); x
Высокоокисленный	U _{0,68} Zr _{0,32} O ₂ : 68,5%	2,3%	1,2%	-	28,0%, 0,35
Низкоокисленный	U _{0,95} Zr _{0,05} O ₂ : 43,6%	2,2%	1,1%	5,1%	48,0%, 0,12

С учетом этой оценки, формальную запись фазового состава образцов кориума двух типов можно представить в виде, как показано в таблице 5.5.

Таблица 5.4. Результаты фазового анализа кориумов двух типов

Тип кориума	Фазовый состав	
	основные фазы	дополнительные фазы
Высокоокисленный	S.s. (U,Zr)O ₂ ((0,537 ± 0,003) нм)	α-Zr(O) (a=0,325 нм, c=0,521 нм, a/c=0,624); (Zr,U)(B,O,C) _{1-x} (0,467 ± 0,001 нм); ZrB ₂
Низкоокисленный	S.s. (U,Zr)O ₂ ((0,545 ± 0,001) нм); (Zr,U)(B,O,C) _{1-x} ((0,467±0,001) нм); α-Zr(O) (a=0,325нм, c=0,521нм, a/c=0,624)	α-U; ZrB ₂

Твердые растворы в фазовом составе кориума характеризовались изменением параметра решетки с 0,530 нм вверху слитка до 0,536 нм внизу слитка, что в первом приближении соответствует изменению химического состава раствора с U_{0,5}Zr_{0,5}O₂ до U_{0,7}Zr_{0,3}O₂.

5.5 Теплофизические свойства кориума

Из слитков, полученных в результате маломасштабных экспериментов, были изготовлены образцы для проведения измерений свойств кориума на УТФИ-2. Подготовка образцов включала следующие процедуры:

- 1) заливку тигля со слитком серой для фиксации полученного расплава и, после ее застывания, диаметральный разрез слитка;
- 2) планирование, разметку и высверливание цилиндрических заготовок диаметром 11 мм и высотой от 5 мм до 8 мм;
- 3) изготовление из заготовок образцов в форме цилиндров высотой не менее 4,0 мм с плоскопараллельными торцевыми поверхностями и доводку поверхностей шлифованием на наждачной бумаге Р1000 (рисунок 5.13 на стр. 200).



а) схема высверливания кернов

б) внешний вид образцов

Рисунок 5.13. Подготовка образцов для исследования на УТФИ-2

Для проведения ТФС было подготовлено 20 образцов разной степени окисленности. Результаты измерения ТФС кориума с низкой степенью окисленности приведены в таблице 5.5.

Таблица 5.5. Результаты измерений свойств кориума низкоокисленного (С=0)

Параметр	Образец 1	Образец 2	Образец 3	Образец 4	Образец 5
$a, 10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}$	$2,49 \pm 0,10$	$1,87 \pm 0,04$	$2,49 \pm 0,22$	$2,53 \pm 0,02$	$2,5 \pm 0,3$
$C, \text{ Дж}/(\text{кг}\cdot\text{град})$	333 ± 21	405 ± 13	364 ± 15	331 ± 4	434 ± 34
$\lambda, \text{ Вт}/(\text{м}\cdot\text{град})$	$8,1 \pm 0,3$	$6,9 \pm 0,4$	$8,1 \pm 0,5$	$7,84 \pm 0,14$	$9,3 \pm 0,5$

Результаты измерения ТФС кориума с высокой степенью окисленности приведены в таблице 5.6.

Таблица 5.6. Результаты измерений свойств кориума высокоокисленного (С=50).

Параметр	Образец 1	Образец 2	Образец 3	Образец 4	Образец 5
$a, 10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}$	$1,18 \pm 0,04$	$0,84 \pm 0,05$	$1,4 \pm 0,4$	$1,20 \pm 0,04$	$1,21 \pm 0,02$
$C, \text{ Дж}/(\text{кг}\cdot\text{град})$	509 ± 20	510 ± 10	528 ± 66	447 ± 24	503 ± 13
$\lambda, \text{ Вт}/(\text{м}\cdot\text{град})$	$5,19 \pm 0,23$	$3,45 \pm 0,13$	$6,03 \pm 0,18$	$4,8 \pm 0,3$	$5,11 \pm 0,11$

Усредненные значения температуропроводности, удельной теплоемкости и теплопроводности по всем образцам кориума показывают, что низкоокисленный кориум обладает повышенной температуро- и теплопроводностью и пониженной теплоемкостью в сравнении с высокоокисленным (таблица 5.7).

Таблица 5.7. Усредненные результаты измерений теплофизических свойств кориума

Параметр	Низкоокисленный кориум	Высокоокисленный кориум
$a, 10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}$	$2,39 \pm 0,26$	$1,15 \pm 0,19$
$C, \text{ Дж}/(\text{кг}\cdot\text{град})$	$380,46 \pm 44,21$	$499,60 \pm 30,67$
$\lambda, \text{ Вт}/(\text{м}\cdot\text{град})$	$8,18 \pm 0,81$	$4,91 \pm 0,94$

Анализ полученных числовых значений ТФС показывает довольно широкий разброс величин свойств даже в пределах кориума одного слитка.

Наиболее ожидаемые отличия свойств кориума в слитке связаны с процессами кристаллизации слитка, которые могут приводить к неоднородности структуры и состава кориума как по высоте расплава, так и в радиальном направлении. Предпосылками к проявлению таких неоднородностей является довольно протяженный температурный интервал кристаллизации материала в диапазоне между линиями солидуса и ликвидуса. Начиная от линии солидуса происходит кристаллизация самой тугоплавкой фазы твердого раствора $(U,Zr)O_2$, имеющего к тому же и самую высокую плотность. В отсутствие конвективного или механического перемешивания следует ожидать преимущественное содержание и наличие повышенной концентрации твердых растворов вблизи границ теплоотвода или в нижних областях слитка. Первое обусловлено постепенным смещением состава жидкой фазы, остающейся на удалении от областей кристаллизации. Концентрирование фазы твердого раствора в донной части тигля может обуславливаться механическим перемещением кристаллитов плотного вещества в менее плотной жидкой фазе под действием гравитации.

Для кориума низкой степени окисленности различия в свойствах проявились уже в результатах измерения объемной плотности кориума образцов. При условии однородности фазового и элементного состава кориума в пределах слитка, различия в величинах плотности и теплопроводности могут быть вызваны разной пористостью или структурой кориума. Удельная теплоемкость является не чувствительным свойством к структуре образца, а определяется в основном его химическим и фазовым составом.

Неоднородность химического и фазового составов модельного кориума в пределах слитка является неоднократно установленным фактом. Так, в экспериментах по получению модельного кориума С-42 с мольным соотношением $v_u/v_{Zr}=0.43$ и исследованиях сечения слитка массой около 100 г было выявлено плавное изменение как фазового, так и элементного состава по высоте слитка. При этом соотношения v_u/v_{Zr} изменялись с 0,35 в верхних областях слитка до 0,52 - в нижних. Твердые растворы в фазовом составе кориума характеризовались изменением параметра решетки с 0,530 нм вверху слитка до 0,536 нм внизу слитка, что в первом приближении соответствует изменению химического состава раствора с $U_{0,5}Zr_{0,5}O_2$ до $U_{0,7}Zr_{0,3}O_2$. В эксперименте же с низкоокисленным кориумом (С-8, $v_u/v_{Zr}=0.64$) наблюдался несколько иной характер изменений фазового состава. Соотношение v_u/v_{Zr} хоть и в меньшей степени, но также плавно изменялось в диапазоне от 0,5 до 0,65 с максимумом в центральной области по высоте слитка.

В предположении аналогичности процессов, видно, что увеличение теплоемкости и снижение теплопроводности образцов из верхней части слитка обусловлены большей долей в твердом растворе диоксида циркония, который имеет существенно более низкие значения теплопроводности и плотности и более высокие значения теплоемкости, в сравнении с диоксидом урана.

Если отследить радиальную составляющую этой неоднородности в образцах довольно затруднительно, то вертикальная составляющая может быть просто оценена при сравнении свойств образцов из нижних и верхних областей слитка.

Результаты измерений подтверждают наличие такой закономерности и указывают на различия в свойствах кориума по высоте слитка.

Исследования элементного состава образцов из верхней и нижней частей слитка кориума исследуемого состава ($C=50$, $v_U/v_{Zr}=0,87$) выявило различие в соотношениях v_U/v_{Zr} , которые составили величину 0,83 - для материала верхней части слитка и 0,92 - для нижней. Результаты фазового анализа не выявили отличий параметров твердого раствора материалов верхней и нижней частей слитков, оценочный состав которого - $U_{0,97}Zr_{0,03}O_2$. Изменение соотношений v_U/v_{Zr} может быть объяснено только разным соотношением урансодержащих фаз ($\alpha-U$, $U_{0,97}Zr_{0,03}O_2$) и фаз, богатых цирконием ($\alpha-Zr(O)$, $Zr(C,B,O)$, ZrB_2). справочные значения теплоемкостей перечисленных фаз приведены в таблице 5.8.

Таблица 5.8. Значения теплоемкостей веществ и соединений [5,6]

Параметр	Zr	ZrO ₂	UO ₂	ZrC	ZrB ₂
Ср, Дж/(кг·град)	290	455	240,6	367,1	427,5

В соответствии с таблицей, при увеличении содержания циркония, следует ожидать роста значений теплоемкости. Такой эффект характерен для теплоемкости кориума высокой степени окисленности. При этом фазовый анализ показал идентичность параметра решетки твердого раствора в верхней и нижней областях слитка, который составляет величину $(0,537 \pm 0,003)$ нм и соответствует оценочному составу $U_{0,7}Zr_{0,3}O_2$.

В целом для высокоокисленного кориума различия в свойствах по высоте слитка проявились несколько противоречиво: более высокие значения объемной плотности нижних образцов сочетаются с уменьшенными значениями теплопроводности.

Сравнение результатов измерений ТФС кориумов разной степени окисленности показало значительное расхождение, в первую очередь, значений удельной теплоемкости прототипов кориума с разным соотношением v_U/v_{Zr} . Такое различие вполне объяснимо увеличением общей доли диоксида циркония.

Результаты измерения ТФС кориума $C=50$ удалось сравнить с результатами, полученными ранее с идентичной окисленностью, приведенной в таблице 5.9 [7]. Особенностью данного состава является соотношение урана к цирконию, которое составляет $v_U/v_{Zr}=1,20$.

Таблица 5.9. Результаты измерений свойств кориума высокой окисленности и соотношением $v_U/v_{Zr}=1,20$ [7]

Параметр	E-1_1	E-1_2	E-3_1	E-3_2	E-4_1	E-4_2
a , 10^{-6} м ² /с	$1,35 \pm 0,01$	$1,36 \pm 0,01$	$1,37 \pm 0,01$	$1,43 \pm 0,02$	$1,38 \pm 0,01$	$1,53 \pm 0,03$
С, Дж/(кг·град)	303 ± 5	301 ± 2	313 ± 3	302 ± 1	340 ± 2	325 ± 3
λ , Вт/(м·град)	$3,6 \pm 0,2$	$3,75 \pm 0,15$	$3,80 \pm 0,12$	$3,95 \pm 0,05$	$4,15 \pm 0,15$	$4,5 \pm 0,2$

Измерения [7] проводились на этой же установке с образцами диаметром 5, 7 мм и импульсным нагревательным элементом в форме спирали Архимеда.

Сравнение показывает, что с увеличением содержания циркония в кориуме (уменьшением соотношения v_U/v_{Zr}), при той же степени окисленности циркония, наблюдается увеличение удельной массовой теплоемкости, коэффициента теплопроводности кориума при уменьшении объемной плотности и температуропроводности. Кроме того, имеются похожие, но менее выраженные различия в свойствах кориума $C=50$ и соотношением $v_U/v_{Zr}=1,20$, измеренных на образцах из верхних и нижних областей слитка.

Заключение

В результате выполненной работы было исследовано четыре состава кориума – низкой ($C=0$, $C=30$) и высокой ($C=50$, $C=70$) степени окисленности.

Было отмечено, что за счет отсутствия или низкого содержания оксида циркония образцы кориума имеют более плотную и менее пористую структуру.

Основной фазой высокоокисленного кориума является $(U,Zr)O_2$, а низкоокисленного - $(U,Zr)O_2$; $(Zr,U)(B,O,C)_{1-x}$, $\alpha-Zr(O)$.

Средняя температуропроводность образцов для $C=0$ и $C=50$ равна $(2,39 \pm 0,26) \cdot 10^{-6}$ м²/с и $(1,15 \pm 0,19) \cdot 10^{-6}$ м²/с соответственно. Удельная теплоемкость образцов составила (380 ± 44) Дж/(кг·град), $-(500 \pm 31)$ Дж/(кг·град), теплопроводность равна $(8,2 \pm 0,8)$ Вт/(м·град) и $(4,9 \pm 0,9)$ Вт/(м·К) для $C=0$ и $C=50$ соответственно.

Результаты измерений, в первую очередь, демонстрируют тенденцию зависимости теплофизических свойств кориума от степени окисленности: средняя температуропроводность и теплопроводность образцов кориума уменьшается, а удельная массовая теплоемкость возрастает по мере увеличения степени окисленности циркония.

При увеличении содержания циркония в кориуме и идентичной степени его окисленности, наблюдается увеличение удельной массовой теплоемкости, коэффициента теплопроводности кориума и уменьшении объемной плотности, температуропроводности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ К ГЛАВЕ 5

1. Crystallography Open Database an open-access collection of crystal structures / Gražulis S., Chateigner D., Downs R.T., Yokochi A.F., Quirós T. M. [et al.].– Appl. Cryst.– 2009.– 42.– P.726-729.
2. PDF-2 ICDD Release 2004.
3. Parker W.J., Jenkins R.J., Butler C., Abott G.J. Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity and thermal conductivity // Journal of Applied Physics.– 1961.– Vol. 32.– No.9.– P. 1678-1684.

4. Харламов А.Г., Юкович В.Н., Краснов В.И. Анализ динамики развития метода вспышки и области его применения // Инженерно-физический журнал.– 1978.– Том 34.– № 3.– С. 553-558.
5. Котельников Р.Б., Башлыков С.Н., Галиакбаров З.Г., Каштанов А.И. Особо тугоплавкие элементы и соединения.– Металлургия.– 1968.– 376 с.
6. Чиркин В.С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники.– Справочник.– Москва, «Атомиздат», 1968 г.
7. Исследования изменения прочности конструкционных реакторных материалов в зависимости от дозы облучения во время коррозионных испытаний под напряжением и исследование температурной зависимости теплофизических свойств кориума (сплава оксидного топлива с материалом оболочки) с различной степенью окисленности: отчет о НИР (промежуточный) / ДГП ИАЭ РГП НЯЦ РК; рук. В.В. Бакланов.– Курчатова, 2013.– 45 с.– Инв. № 0112РК00795.

Г Л А В А 6

Исследования физико-химических свойств ядерного уран-графитового топлива

*Гордиенко Ю.Н., Бочков В.С., Кульсартов Т.В., Понкратов Ю.В., Тулубаев Е.Ю.,
Самарханов К.К., Карамбаева И.С., Слюянов А.Н., Толмачев С.В.*

Введение

Материалы на основе графита нашли широкое применение в ядерных и термо-ядерных реакторах (ЯР и ТЯР). В ЯР углеродные материалы используются в качестве конструкционного материала активной зоны, отражателей и замедлителей (атомные реакторы различного назначения: исследовательские, транспортные, промышленные уран-графитовые (ПУГР), высокотемпературные (ВТГР), энергетические (ЭГП-6) и реакторы большой мощности канальные (РБМ-К) [1]. В термоядерной энергетике графит широко используется в большинстве токамаков (JET, DIII-D, TFTR и др.) в качестве материала первой стенки, лимитера, дивертора.

Предполагается, что в ближайшем будущем использование графитовых материалов еще более расширится за счет создания высокотемпературных газоохлаждаемых ЯР и создания новых типов ядерного топлива для перевода исследовательских реакторов с уран-графитовым топливом на более низкое обогащение по урану-235.

Ядерные исследовательские реакторы, включающие стационарные и импульсные реакторы, критические и подкритические сборки, используются как источники нейтронов и являются уникальным инструментом для экспериментальных исследований в различных областях науки и техники.

Основной характеристикой исследовательского реактора является отношение плотности потока нейтронов к мощности реактора. Приоритет для исследователей и конструкторов состоит в том, чтобы максимизировать плотность потока нейтронов, доступного в экспериментальных каналах при минимизации мощности реактора. Для достижения этой цели традиционно требуется небольшая активная зона, работающая на урановом топливе на самом высоком уровне обогащения. По этой причине большинство исследовательских реакторов в России и Соединенных Штатах были разработаны для применения с высокообогащенным урановым топливом (ВОУ-топливом), обогащенным ураном-235 до 93%, т.е. уровня, обычно применяемого для ядерного оружия. В конце 1970-х годов, как в Соединенных Штатах, так и в Советском Союзе, было осознано, что использование ВОУ-топлива в гражданских исследовательских

реакторах, особенно если топливо экспортируется в другие страны, создает риски распространения. Для борьбы с этими рисками обе страны приступили к реализации программ по снижению уровня обогащения топлива, поставляемого в другие страны, с 80-90% до 20-36% урана-235. Советская программа по снижению обогащения топлива исследовательских реакторов была принята в начале 1980-х годов: на первом этапе уровень обогащения был понижен до 36%, а на втором – до 20%. В 1993 г. Россия и США начали сотрудничество по разработке низкообогащенного топлива (менее 20%) для исследовательских реакторов, поставленных Россией (СССР) за границу. Это продолжающаяся программа является частью Программы снижения обогащения топлива исследовательских и испытательных реакторов (RERTR). В 1994 г. Министерство атомной энергетики Российской Федерации начало программу «Создание тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) и тепловыделяющих сборок (ТВС) с топливом, обогащенным ураном-235 до 20% для активных зон исследовательских реакторов». Основная цель программы состояла в разработке и организации производства ТВС для реакторов, поставленных Советским Союзом в третьи страны. К 2006 г. работы по первому этапу были практически завершены. На Новосибирском заводе химконцентратов было начато производство топлива с обогащением по урану-235 ниже 20% для исследовательских реакторов, поставленных в Венгрию, Украину, Вьетнам, Чешскую Республику, Узбекистан, Ливию, Болгарию и Северную Корею.

Успешная реализация первого этапа заложила основы для заключения в мае 2004 г. межправительственного российско-американского соглашения «О сотрудничестве по ввозу в Российскую Федерацию ядерного топлива исследовательских реакторов, произведенного в Российской Федерации» (программа RRRFR). Это придало дополнительный импульс усилиям по возвращению изготовленного в России свежего и отработанного высокообогащенного уранового топлива из третьих стран в Россию и конверсии этих исследовательских реакторов на топливо с НОУ. В программе участвуют 14 стран: Белоруссия, Болгария, Венгрия, Вьетнам, Германия, Казахстан, Латвия, Ливия, Польша, Румыния, Сербия, Узбекистан, Украина и Чешская Республика.

Из Латвии, Болгарии, Румынии, Ливии, Сербии, Украины и Вьетнама были возвращены все запасы топлива с ВОУ. Важно отметить, что российско-американское сотрудничество по конверсии исследовательских реакторов и возврату свежего и отработанного высокообогащенного топлива было поддержано совместными заявлениями российского и американского президентов В. Путина и Дж. Буша в 2005 году, Д. Медведева и Б. Обамы в 2009 году.

Из вышесказанного можно отметить, что одной из важных задач конверсии исследовательских реакторов является разработка нового низкообогащенного уран-графитового топлива (НОУ-топлива).

Основная цель программ по разработке топлива заключается в усовершенствовании существующих и создании новых видов топлива, обеспечивающих максимальную загрузку урана с целью улучшения характеристик исследовательских и испытательных реакторов, использующих топливо с уменьшенным обогащением. Основания для таких

разработок лежат в различных областях проблем современности: с одной стороны – это коммерческие причины, которые требуют повышения технико-экономических и эксплуатационных свойств новых типов ядерного топлива; с другой – это вопросы безопасности – требования к лучшей устойчивости топлива в гипотетических аварийных ситуациях, вопросы снижения обогащения топлива для задач нераспространения ядерных материалов.

Национальный ядерный центр Республики Казахстан обладает двумя уникальными исследовательскими реакторами ИВГ.1М и ИГР, которые должны пройти (и успешно проходят) процедуру конверсии со снижением обогащения топлива с 90% до 19,75% по урану-235. В рамках конверсии исследовательских реакторов проводятся различные исследования (испытания) возможности перехода ЯР на низкообогащенное уран-графитовое топливо.

Конструкционный графит активных зон ЯР находится под постоянным воздействием химически активных по отношению к углероду примесей в теплоносителе или газе, заполняющем кладку активной зоны при проведении экспериментов. Рабочие температуры, при которых функционируют конструкционные, поглощающие и тепловыделяющие элементы из графита в активной зоне, колеблются от 300 до 1250 °С в зависимости от типа реактора. В высокотемпературной части этой области активно происходят реакции окисления графита при взаимодействии с такими примесями в теплоносителе, как O_2 , H_2O , CO_2 , H_2 , что приводит к деградации его прочностных свойств и снижению теплопроводности [2]. Поэтому исследования изменения основных физико-химических свойств уран-графитового топлива при взаимодействии с химически активными газовыми и парогазовыми смесями являются одной из важных задач при прогнозировании поведения материалов в условиях работы ЯР, а создание методической и аппаратурной базы для обеспечения таких исследований является актуальной проблемой современных ядерных технологий.

Одним из эффективных методов исследования механизма и кинетики процессов коррозии уран-графитового топлива является комплексный термический анализ, сочетающий в рамках единой установки термогравиметрический, дифференциально-термический и масс-спектрометрический анализ. Все перечисленные методы нашли широкое применение в практике научных исследований, однако, простота и легкость получения экспериментальных данных методами термического анализа обратно пропорциональна усилиям, необходимым для выявления надежной достоверной информации о свойствах изучаемого материала.

В 2018 году в Филиале ИАЭ РГП НЯЦ РК в рамках НТП «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан на 2018-2020 годы» темы «Исследования физико-химических свойств ядерного уран-графитового топлива» был проведен первый этап «Разработка методов исследования свойств ядерного уран-графитового топлива и создание экспериментальной установки по исследованию высокотемпературной коррозии реакторных материалов» [3]. В результате был создан экспериментальный комплекс (с условным названием ТиГра) для проведения исследования процессов

высокотемпературной коррозии реакторных материалов, в том числе уран-графитового топлива. Данный комплекс позволяет за время проведения одного эксперимента одновременно реализовать три метода исследований: масс-спектрометрию, термогравиметрию и дифференциально сканирующую калориметрию.

В 2019 году в рамках второго этапа «Отработка методики проведения экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива» [4] была разработана и отработана методика проведения экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива; определены оптимальные параметры экспериментального комплекса ТиГрА и выработаны методические рекомендации для проведения исследования процессов высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива.

Работы, выполненные в 2020 году, являлись заключительным этапом под названием «Проведение экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива» [5] в результате выполнения которого были: изготовлены исследуемые образцы; описаны процедуры по подготовке экспериментального комплекса ТиГрА к экспериментам; приведены результаты экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива при различном составе химически активных газов в реакционной камере термогравиметрического анализатора комплекса ТиГрА; проведен анализ полученных результатов, определяющий ряд параметров процессов коррозии ядерного уран-графитового топлива.

В данной главе приведено краткое описание результатов работ, выполненных в Филиале ИАЭ РГП НЯЦ РК в период с 2018 по 2020 гг. в рамках темы «Исследования физико-химических свойств ядерного уран-графитового топлива» НТП «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан на 2018-2020 годы».

6.1 Анализ литературных данных по исследованиям взаимодействия графитовых материалов с парами воды и кислородом при высокой температуре

В 2018 году, на первом этапе создания экспериментального комплекса для проведения исследования процессов высокотемпературной коррозии уран-графитового топлива, был проведен анализ (и составлен литературный обзор [6]) отечественной и зарубежной литературы по исследованию взаимодействия графитовых материалов с химически активными газами и парогазовыми смесями. В рамках проведенного анализа была изучена структура, свойства, строение кристаллических решеток, физические и химические свойства графитовых материалов; рассмотрены процессы производства искусственных реакторных графитов, основные технологические этапы и аспекты производства, механизм горения твердого углерода. Подробно были рассмотрены наиболее актуальные реакции взаимодействия графитовых материалов с такими веществами как: кислород, водород, углекислый газ, пары воды, азот, а также с некоторыми металлами и солями.

Ниже представлены краткие выдержки из литературного обзора, касающиеся возможных реакций химического взаимодействия некоторых газов с графитовыми материалами ЯР и ТЯР.

Наиболее распространенными и перспективными газами для охлаждения атомных реакторов являются гелий, азот, двуокись углерода и воздух. Скорость взаимодействия графита с газами обычно определяют по относительному изменению веса образца. Влияние удельной поверхности, как правило не учитывается, хотя известно, что она изменяется при окислении. Гелий не взаимодействует с графитом даже в условиях облучения в реакторе. При высоких температурах (2000 °С) может наблюдаться перенос массы графита потоком гелия за счет выкрашивания частиц графита, однако такая эрозия заканчивается после удаления частиц, имевших недостаточное сцепление с основным материалом. Примеси в гелии, например кислород, могут существенно изменять картину и быть причиной коррозии графита [7].

Взаимодействие графита с кислородом

Взаимодействию углерода с кислородом и двуокисью углерода посвящено много работ, однако изучалось в основном взаимодействие с этими газами углерода, обладающего низкой степенью кристаллической упорядоченности и большой зольностью. Мы рассматривали только вопросы, связанные с взаимодействием этих газов с искусственным графитом (в основном реакторных марок).

При комнатной температуре графит практически не взаимодействует с кислородом, но при температуре выше 650 К он начинает вступать во взаимодействие по следующим реакциям



Температура начала реакции зависит от совершенства кристаллической структуры, а ее скорость растет с повышением температуры. С увеличением упорядоченности кристаллической структуры повышается температура начала реакции.

Облучение системы «графит – газ» нейтронами или потоком γ -квантов приводит, как к появлению дефектов структуры графита, так и к ионизации молекул газа. Оба эти явления могут существенно изменить поведение графита, в частности, сдвинуть начало реакции окисления в область более низких температур по отношению к тем, которые имеют место в отсутствии облучения. Изучая окисление реакторного графита, предварительно облученного интегральным потоком нейтронов $4 \cdot 10^{20}$ нейтрон/см², Косиба и Дайнс обнаружили увеличение скорости реакции в шесть раз.

Взаимодействие графита с углекислым газом

Взаимодействие графита с углекислым газом происходит аналогично взаимодействию с кислородом, реакция взаимодействия графита с CO₂ начинает протекать при

температуре выше 400 °С. Основное различие между окислением графита двуокисью углерода и кислородом состоит в том, что первая реакция эндотермична, тогда как вторая – экзотермична.

Общая реакция взаимодействия графита с двуокисью углерода выглядит следующим образом

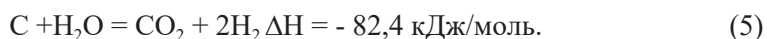
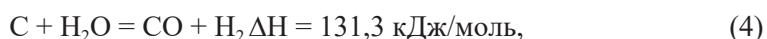


Взаимодействие графита с CO_2 при температуре ниже 500 °С проходит с такой малой скоростью, что потери графита составляют около 0,1% за 20 лет [8]. При температуре до 400 °С содержание CO_2 в составе равновесной газовой смеси приближается к 100%, направление реакции сдвинуто в обратном направлении. В диапазоне умеренных температур от 400 °С до 1000 °С равновесный газ будет содержать соизмеримые количества CO и CO_2 , реакция будет являться обратимой. Содержание CO в равновесном газе будет приближаться к 100% в диапазоне высоких температур, т.е. выше 1000 °С.

Взаимодействие графита с парами воды

До 430 °С графит с парами воды реагирует довольно медленно. При температурах выше 430 °С, водяной пар начинает заметно вступать в реакцию с графитом.

Взаимодействие графита с парами воды протекает согласно следующим реакциям:



Взаимодействие графита с водородом

Основным продуктом взаимодействия графита с водородом в области от 300 °С до 1000 °С является метан. С ростом температуры количество метана, находящегося в равновесии с графитом, уменьшается, и при температуре близкой к 1000 °С и давлении 1 ат. равновесие практически сдвигается в сторону исходных веществ. Взаимодействие графита с водородом протекает по следующей реакции:



При повышенных давлениях количество равновесного метана увеличивается, но с ростом температуры также убывает. Реакция взаимодействия графита с водородом может ускоряться в присутствии катализатора, например, железа [9].

При контакте водорода с графитом также может протекать процесс хемосорбции. Хемосорбция водорода происходит по активным местам, которые представляют собой атомы углерода, находящиеся на периферии кристаллической решетки. При повышенных температурах водород может реагировать с адсорбированным на графите кислородом, что является очень эффективным способом удаления поверхностных окислов графита.

Взаимодействие графита с азотом

Графит с молекулярным азотом практически не взаимодействует, так как константа равновесия этой реакции чрезвычайно мала. Однако взаимодействие с атомарным азотом происходит с образованием цианогена (C_2N_2) достаточно легко, причем константа равновесия уменьшается с ростом температуры. При добавках водорода продуктом реакции углерода и азота при 1050 К является синильная кислота [7]. В работе [10] на образцах графита CSF показано, что при взаимодействии графита с азотом в условиях тлеющего разряда образуется парацианоген



причем реакция проходит лишь в том случае, если образец графита помещается непосредственно в разряд. Скорость реакции зависит от давления, а ее максимум находится при 0,19 – 0,60 мм.рт.ст. Зависимость скорости реакции от давления можно объяснить тем, что имеется связь между числом активированных молекул и длиной свободного пробега. При наличии в реакционном пространстве следов кислорода или водорода могут образовываться соединения $C_6N_6H_4$ и $(CNO)_x$.

В условиях облучения возможно образование окислов азота. Их взаимодействие с углеродом изучалось на коксах при 650 К. Продуктами реакции являются CO_2 и азот



а при более высоких температурах – окись углерода.

На основе проведенного литературного анализа с учетом специфических особенностей подготовки и проведения экспериментов с реакторными материалами, выделенных в обзоре, была разработана схема проведения экспериментов и создан экспериментальный комплекс для проведения исследований высокотемпературной коррозии реакторных графитовых материалов.

6.2 Разработка и создание экспериментального комплекса для исследования процессов высокотемпературной коррозии реакторных материалов

При разработке схемы экспериментов и экспериментального комплекса для проведения исследований высокотемпературной коррозии реакторных материалов были подробно изучены и выбраны три метода.

Один из них – метод термогравиметрического анализа (ТГ-анализ). Принцип ТГ-анализа заключается в наблюдении массы исследуемого образца или навески вещества при изменении ее температуры. Результатом ТГ-анализа являются термические кривые – термограммы, которые зависят, главным образом, от химического состава и структуры исследуемого образца.

Другой способ термического анализа, который широко используется в науке и промышленности – это дифференциально сканирующая калориметрия (ДСК-метод). Данный метод применяется для определения количества теплоты, выделяющегося или

поглощающегося образцом при нагревании, охлаждении или при постоянной температуре. Метод ДСК предоставляет информацию о температурах и теплоте фазовых переходов, термодинамике и кинетике химических реакций, химическом составе, чистоте, термической и окислительной стабильности различных материалов.

Еще один метод, который используется в исследованиях материалов ЯР и ТЯР, является масс-спектрометрический метод (МС-метод). С помощью данного метода осуществляется измерение газового состава, выделяющегося из исследуемого образца, полученные данные анализируются и делаются выводы о тех или иных процессах химических взаимодействий. Данный метод имеет определенные трудности с получением абсолютных значений параметров. Анализ изменения массы образца в таких экспериментах определяют посредством его взвешивания до и после эксперимента.

Все три перечисленных метода хорошо подходят для проведения исследования механизмов коррозии и взаимодействия графитовых материалов ЯР и ТЯР. Поэтому сотрудниками Филиала ИАЭ РГП НЯЦ РК в 2018 году решалась задача по разработке и созданию экспериментальной установки для проведения комплексных исследований, которая бы позволила объединить в себе все три метода анализа, с целью получения более расширенных экспериментальных данных за один эксперимент.

На рисунке 6.1 представлена блок-схема экспериментов по исследованию высокотемпературной коррозии реакторных материалов.

В соответствии с блок-схемой (рисунок 6.1) была разработана принципиальная схема экспериментального комплекса (с условным названием ТиГра), представленная на рисунке 6.2.

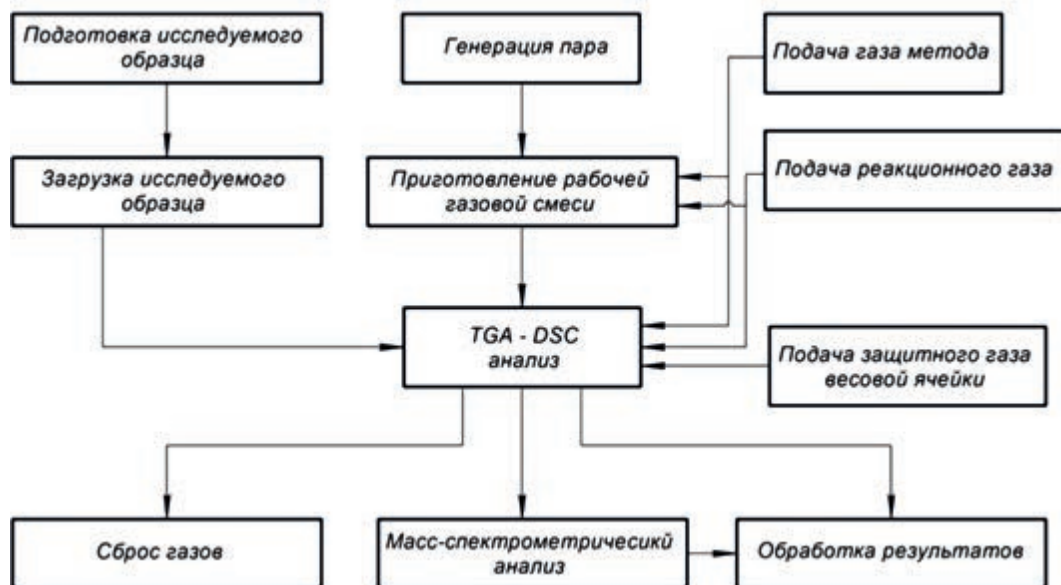
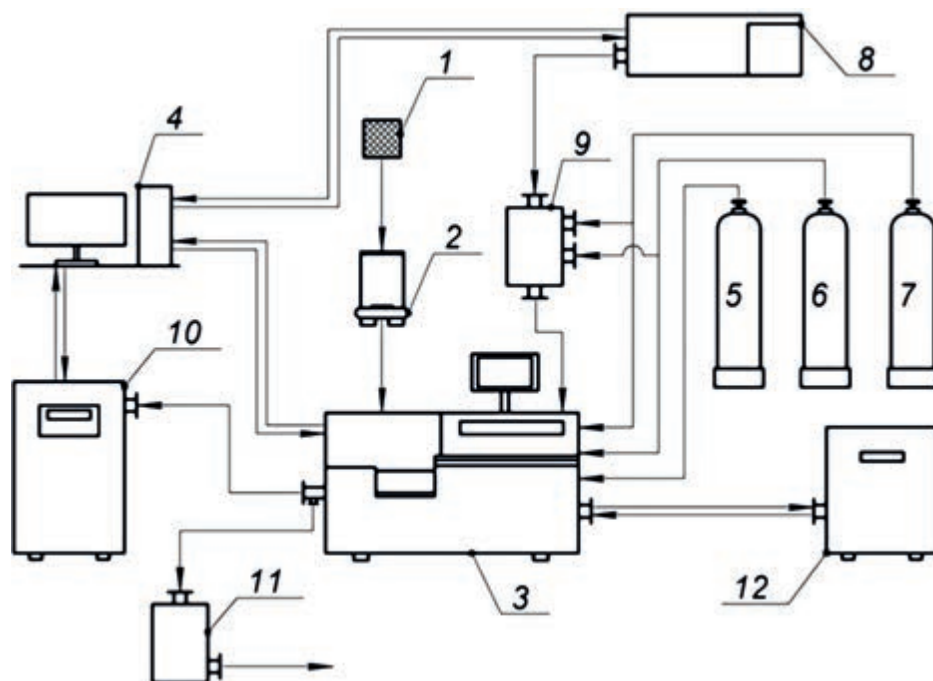


Рисунок 6.1. Блок-схема экспериментов высокотемпературной коррозии реакторных материалов



1 – образец; 2 – аналитические весы; 3 – ТГ-анализатор; 4 – компьютер; 5 – реакционный газ; 6 – продувочный газ; 7 – защитный газ; 8 – генератор влажности; 9 – емкость для приготовления парогазовой смеси; 10 – масс – спектрометр; 11 – газовый фильтр; 12 – криостат

Рисунок 6.2. Принципиальная схема экспериментального комплекса

При создании экспериментального комплекса необходимо было учесть следующее:

- запуск отдельных блоков (измерительных приборов и аппаратуры), входящих в состав комплекса, должен быть синхронизирован;
- наличие в комплексе системы подготовки газовой среды заданного состава;
- система выхлопа экспериментального комплекса должна быть выполнена таким образом, чтобы снизить давление остаточных газов в рабочей камере установки, обеспечить очистку продувочного газа и предотвратить попадание отработанных газов обратно в рабочую камеру.

В состав исследовательского комплекса ТиГрА входят четыре основных модуля:

- термогравиметрический анализатор (ТГ-анализатор);
- масс-спектрометр;
- генератор влажности;
- аналитические весы.

Разработанный исследовательский комплекс ТиГрА, позволит проводить эксперименты по исследованию коррозионных свойств графитовых материалов (в том числе уран-графитового топлива) и изучать процессы, протекающие в результате химических взаимодействий.

В таблице 6.1 представлена краткая информация об основных модулях экспериментального комплекса.

Таблица 6.1. Характеристики модулей экспериментального комплекса ТиГра

Наименование модуля	Назначение	Определяемые параметры	Технические характеристики
ТГ-анализатор	Синхронный анализ материалов при нагревании	ТГА: изменение массы, ДСК: температуры и тепловые эффекты фазовых переходов, энтальпия	Рабочий температурный диапазон – от 20 °С до 1600 °С, интервал скоростей нагрева от 0,02 °С /мин до 150 °С /мин. Точность измерения температуры печи: ± 0,3 °С. Время нагрева печи (от 20 °С до 1600 °С): 10 мин. Встроенная весовая ячейка – ультрамикровесы с разрешением 0,1 мкг во всем диапазоне взвешивания
Масс-спектрометр	Непрерывная масс-спектрометрическая регистрация состава газовой фазы для системы синхронного анализа материалов в температурном диапазоне: от 83 К до 1900 К	Масс-спектрометрический состав компонентов выделяющихся газов при давлении в измеряемом объеме не более 1000 мбар	Одновременное определение 128 различных атомных масс в диапазоне от 1 а.е.м. до 300 а.е.м. Встроенный ТМ и мембранный насосы. Скорость откачки ТМН: по N ₂ – 67 л/с; по He – 58 л/с; по H ₂ – 48 л/с; по Ar – 66 л/с. Частота вращения ТМН: 90000 об/мин
Генератор влажности	Синхронный анализ материалов при нагревании в среде с контролируемой относительной влажностью от не более 2% до не менее 98%	Генерация и поддержание среды с заданной влажностью в объеме печи Модуля 1	Диапазон температур при контролируемой влажности: от 0 °С до 98 °С . Диапазон относительной влажности: от 2% до 98% Давление на выходе: от 1 бар до 6 бар. Скорость потока: от 5 мл/мин до 500 мл/мин. Объем водного резервуара: 700 мл
Аналитические весы	Высокоточное взвешивание образцов	Массы образцов на стадии пробоподготовки	Предел взвешивания, не более 120 г. Дискретность, до 42 г – 0,01 мг, свыше 42 г – 0,1 мкг.КТ по ГОСТ 24104-01 I (специальный)

6.3 Монтаж и ПНР экспериментального комплекса ТиГра

Одновременно с разработкой принципиальной схемы экспериментального комплекса, проводились работы по изготовлению недостающих комплектующих узлов систем, входящих в состав экспериментального комплекса. После изготовления комплектующих был проведен монтаж всех блоков экспериментального комплекса в соответствии с разработанной принципиальной схемой комплекса ТиГра (рисунок 6.2). На рисунке 6.3 приведена фотография общего вида экспериментального комплекса ТиГра.



Рисунок 6.3. Общий вид экспериментального комплекса ТиГрА

После монтажа всех систем экспериментального комплекса были проведены пусконаладочные работы и выполнены технологические процедуры по подготовке стенда ТиГрА к проведению экспериментов.

6.4 Определение оптимальных параметров экспериментального комплекса при проведении экспериментов по исследованию взаимодействия газов и парогазовых смесей с графитовыми материалами ЯР

Разработка и тестирование методов анализа имеют огромное значение для современных экспериментальных установок. Процесс обычно начинается с разработки пробного метода, который затем оптимизируется и тестируется в несколько последовательных этапов. В результате появляется новый метод анализа, используемый затем в стандартных экспериментах. Разработка и тестирование процедуры измерения, как правило, требует значительных затрат времени и средств. Это означает, что очень важно с самого начала правильно выбрать пробный метод и определить оптимальные параметры экспериментальной установки. Ниже приведены краткие методические рекомендации по определению оптимальных параметров экспериментального комплекса ТиГрА.

Подготовка образцов

До начала проведения термических исследований стоит подробнее остановиться на требованиях, которые предъявляются к исследуемому образцу.

Образец не должен взаимодействовать с материалом тигля, в противном случае полученные данные не могут быть верно интерпретированы. При исследованиях следует учитывать физико-химические свойства образца и не допускать испарения компонентов исследуемого материала в том случае, когда это может привести к загрязнению внутренней поверхности реакционной камеры ТГ-анализатора комплекса ТиГра. Для получения более точных результатов стоит также учитывать, что образец должен быть как можно более однородным.

Размеры образца должны быть минимально достаточными для получения результатов измерения с желаемой точностью (т.е. настолько большими, насколько необходимо, но в то же время настолько малые, насколько возможно). Необходимо начинать с небольших навесок образца, например, от 2 мг до 5 мг.

При размещении образца в тигле необходимо учитывать следующее:

- а) нельзя заполнять тигли до верха;
- б) для достижения наилучшей теплопроводности необходимо обеспечить оптимальный контакт образца с тиглем;
- в) образец не должен двигаться в тигле.

Определение типа датчика и тигля

Существуют датчики ТГА разных типов (рисунок 6.4). Применение в модуле ТГА датчика того или иного типа зависит от типа печи и от метрологических требований. В печах некоторых типов ТГ-анализаторов возможно применение нескольких взаимозаменяемых типов датчиков.

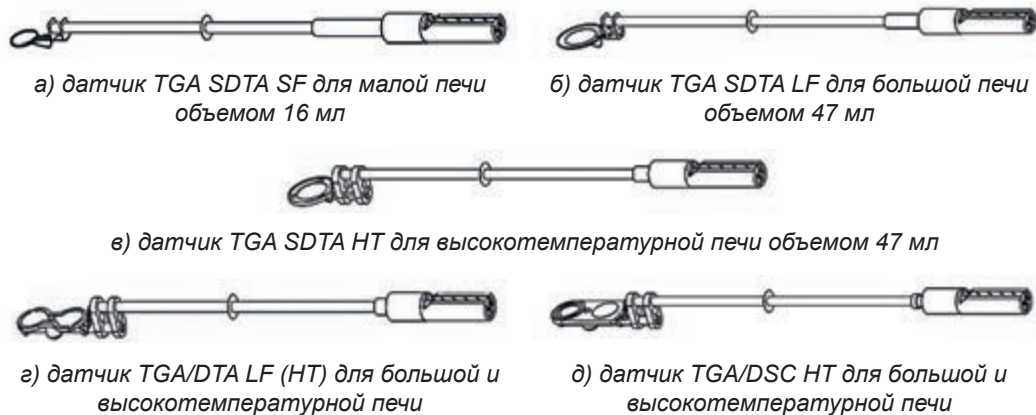
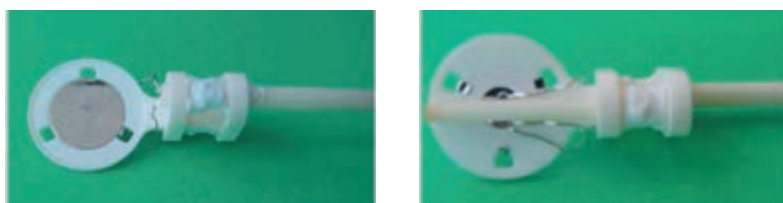


Рисунок 6.4. Датчики, используемые в ТГ-анализаторе

Датчик TGA SDTA HT

Держатель тигля в датчике TGA SDTA HT состоит из корундового кольца и платинородиевого диска. Платинородиевый диск вставлен в корундовое кольцо. Термопара типа R помещается непосредственно под держателем тигля, благодаря чему температура измеряется в непосредственной близости к образцу (рисунок 6.5).



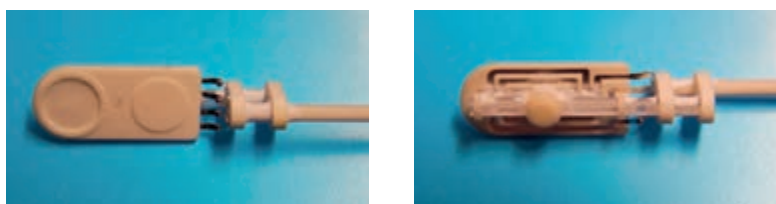
а) верхняя сторона

б) нижняя сторона

Рисунок 6.5. Датчик TGA SDTA HT

Датчик TGA DSC HT

Аналогично датчику TGA DTA HT, датчик TGA DSC HT имеют двойной держатель тигля. Тигель с образцом помещается на правую часть держателя, а тигель с эталоном — на левую. Датчик TGA DSC HT является высокотемпературным вариантом, он также изготовлен из жаропрочных материалов и пригоден к использованию в высокотемпературной печи (рисунок 6.6).

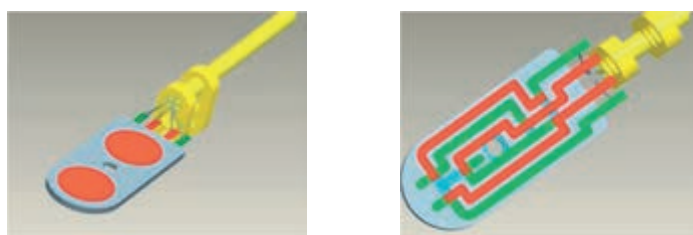


а) верхняя сторона

б) нижняя сторона

Рисунок 6.6. Датчик TGA DSC HT

Электрическая цепь, которая видна на нижней стороне держателя тигля (рисунок 6.7б), содержит шесть термопар типа R. Холодные и горячие спаи термопар расположены в разных точках в зоне образца и в зоне эталона и формируют за счет этого сигнал ДСК.



а) верхняя сторона

б) нижняя сторона

Рисунок 6.7. Схематический вид датчика TGA DSC HT

В состав экспериментального комплекса ТиГрА входит модуль термогравиметрического анализатора TGA/DSC 3+ с высокотемпературной печью. Поэтому в экспериментах по исследованию процессов высокотемпературной коррозии ядерного

уран-графитового топлива необходимо использовать датчики, применяемые для высокотемпературной печи (рисунок 6.4 в, г, д) в зависимости от метода измерения.

При выборе тигля, используемого в экспериментах, важно обратить внимание на следующие вопросы:

- метод измерения (ДСК-метод, ТГ-анализ или ДТА);
- объем тигля (масса образца, газообмен);
- теплоемкость и теплопроводность тигля. Эти параметры влияют на разрешающую способность (разделение тепловых эффектов) и чувствительность измерений;
- материал тигля. Материал образца не должен вступать в реакцию с материалом тигля;
- диапазон температуры исследуемых образцов;
- атмосфера в печи ТГ-анализатора TGA/DSC 3+.

Дополнительные соображения по выбору тигля представлены на рисунке 6.8.



Рисунок 6.8. Факторы, влияющие на выбор тигля для измерений ТГ-анализатором TGA/DSC 3+

В таблице 6.2 показано, какие тигли можно использовать на датчиках разных типов.

Таблица 6.2. Объемы тиглей для разных датчиков

Тип датчика	Объем тигля				
	≤ 70 мкл	100 мкл	150 мкл	600 мкл	900 мкл
Датчик TGA SDTA HT	≤ 70 мкл	100 мкл	150 мкл	600 мкл	900 мкл
Датчик TGA/DTA HT	≤ 70 мкл	100 мкл	150 мкл	600 мкл	нет
Датчик TGA DSC HT	≤ 70 мкл	100 мкл	150 мкл	600 мкл	нет

Тигли объемом от 20 мкл до 900 мкл изготавливаются из различных материалов (рисунок 6.9).

В экспериментах по исследованию процессов высокотемпературной коррозии уран-графитового топлива рекомендуется использовать тигли из оксида алюминия как с крышкой, так и без крышки, объемом от 600 мкл до 900 мкл.

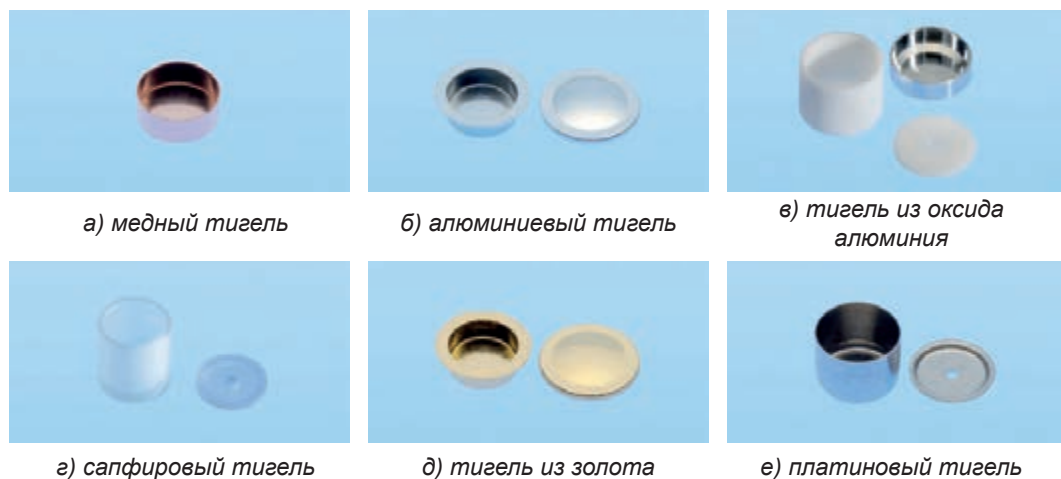


Рисунок 6.9. Тигли из разных материалов

Выбор температурной программы эксперимента

При выборе температурной программы для проведения эксперимента нужно решить два основных вопроса:

- какой тип температурной программы выбрать из одного сегмента (динамического или статического), из нескольких сегментов (чередование динамических и статических), с модуляцией температуры (набор динамических и статических сегментов);
- какие значения параметров (скорость нагрева, температура начала и окончания измерения и, если нужно, период и амплитуду модуляции температуры) задать для выбранной программы.

В таблице 6.3 (см. стр. 220) приведены возможные температурные программы и даны рекомендации по их использованию.

При выборе скорости нагрева образца и температур начала и окончания измерения нужно принимать во внимание следующие факторы:

- теплопроводность образца (распределение температуры в образце должно быть по возможности максимально однородным, что может потребовать снижения скорости нагрева образца);
- с уменьшением скорости нагрева улучшается разрешение по температуре;
- с повышением скорости нагрева тепловые эффекты становятся более выраженными;
- температура начала и окончания измерения. До первого теплового эффекта и за последним тепловым эффектом необходимо иметь достаточные участки термограммы для надежного проведения базовой линии.

Рекомендуемые длительности «крайних» участков составляют 3 мин для ДСК-метода, 5 мин для ТГ-анализа.

Таблица 6.3. Варианты температурных программ

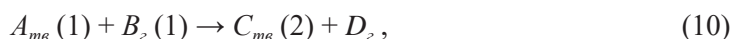
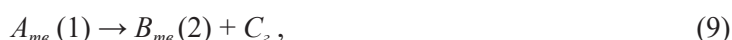
<p>Один сегмент динамического нагрева с постоянной скоростью нагрева – базовая температурная программа</p>	<p>Температурная программа из нескольких сегментов (изотермических периодов и динамических сегментов нагрева и охлаждения)</p>	<p>Программа с модуляцией температуры</p>
<p><i>ДСК-метод</i></p>		
<p>Типичная скорость нагрева от 10 °С/мин до 20 °С/мин. Меньшие скорости нагрева дают выигрыш в разрешении за счет некоторой чувствительности</p>	<p>Облегчает интерпретацию результатов анализа; используемые скорости нагрева и охлаждения обычно лежат в диапазоне от 5 °С/мин до 20 °С/мин; требуется предварительная термическая обработка</p>	<p>Типичные параметры: скорость нагрева от 0,5 °С/мин до 2 °С/мин (β); амплитуда модуляции температуры от 0,2 °С/мин до 2 °С/мин (ΔT); период от 40 с до 120 с (P)</p>
<p><i>ТГ-метод</i></p>		
<p>Типичная скорость нагрева от 10 °С/мин до 20 °С /мин.</p>	<p>Используется в особых случаях (при термоциклах и т.д.)</p>	<p>Прямое измерение зависимости эффективной энергии активации реакции от глубины превращения</p>

Выбор атмосферы печи термогравиметрического анализатора

В термическом анализе с использованием ДСК- и ТГ-метода выбор используемой при измерении атмосферы определяет тип получаемой информации.

Окружающая атмосфера может носить окислительный, восстановительный или нейтральный характер по отношению к исследуемому образцу и определяется, как правило, величиной парциального давления кислорода (P_{O_2}) в газовой фазе. Выбор атмосферы в камере печи зависит от поставленных задач [11–14].

Можно выделить три типа обратимых и необратимых реакций



где $A_{mв}$ – исходное вещество в твердом состоянии;

B, C, D ($m_{в/2}$) – продукты разложения в твердом или газообразном состоянии;

B_2 – реакционный газ.

Использование инертного газа служит для удаления газообразных продуктов разложения в реакциях (1) и (2) и для предотвращения реакции (3). Если атмосфера печи содержит тот же газ, что и выделяющийся во время реакции, то его влияние скажется только на обратной реакции (1) и не отразится на реакции (2). Если в реакции (3) состав газа В изменится, то влияние на реакцию будет зависеть от природы введенного газа.

Атмосфера в камере печи может оказывать теплофизическое и химическое воздействие на исследуемый образец. Под теплофизическим воздействием понимается изменение формы ДТА-кривых вследствие различной теплопроводности газов, окружающих образец.

Газ, вступающий в химическое взаимодействие с исследуемым веществом, оказывает более сильное влияние на ход ДТА-кривой [15].

Как правило, для предотвращения возможных химических реакций (Po_2) в измерительной ячейке термогравиметрического анализатора достаточно поддерживать на уровне 0,01 – 0,1 Па. В качестве газов-носителей используется азот, аргон или гелий высокой чистоты, прошедшие очистку от кислорода и влаги. Для обеспечения удовлетворительного теплообмена в камере печи поддерживается общее давление на уровне 10^5 Па.

Требуемый состав газовой фазы необходимо определять перед постановкой каждого эксперимента, основываясь на задачах исследования.

Применение статической атмосферы при наличии реакций с газообразными продуктами не рекомендуется, потому что в печи существуют конвективные потоки, которые меняют концентрацию газа вокруг образца. Наилучшая воспроизводимость результатов достигается в динамической атмосфере при строго регулируемых условиях (таких как время продувки, стабильность продувки и поддержание постоянного расхода продувочного газа).

Выбор оптимальных параметров при масс-спектрометрических измерениях

Для проведения качественных экспериментов по высокотемпературной коррозии уран-графитового топлива на экспериментальном комплексе ТиГра была проведена серия методических измерений в штатном режиме работы масс-спектрометра (МС) и в режиме чувствительности с использованием вторичного электронного умножителя. В результате сравнения полученных масс-спектров определено, что наиболее подходящим режимом для проведения экспериментов по исследованию взаимодействия газовых и парогазовых смесей с графитовыми материалами ядерного реактора является «чувствительный режим» (SEM) регистрации.

Следующая серия экспериментов позволила оценить влияние места расположения заборного капилляра в печи термогравиметрического анализатора на регистрирующий сигнал МС. Результаты экспериментов показали, что на величину сигнала МС заметное влияние оказывает фактическое место расположения капилляра в печи. Было определено оптимальное положение капилляра в реакционной камере термогравиметрического комплекса ТиГра. Кончик капилляра в экспериментах располагали в печи, как можно ближе к держателю тигля (идеальное расстояние составило 19,4 см).

Заключительной серией были эксперименты с прогревом пробоотборного капилляра в диапазоне температуры от 60 °С до 200 °С с шагом нагрева 50 °С. Оптимальная температура пробоотборного капилляра на основании полученных результатов составила 150 °С.

Таким образом, для получения наилучших результатов при масс-спектрометрических измерениях в экспериментах с уран-графитовым топливом необходимо учесть влияние ряда различных параметров эксперимента. Интенсивность сигнала МС зависит от массы образца, напряжения вторичного электронного умножителя (ВЭУ), расхода газа в печи ТГ-анализатора, места расположения и температуры капилляра в печи. Самая лучшая чувствительность была получена при малых расходах газа (однако, надо учесть, что для защиты весов от воздействия продуктов разложения расход защитного газа должен быть не менее 20 мл/мин) и больших массах образца. Кроме этого, необходимо оптимизировать напряжение ВЭУ МС. Делать это необходимо с большой осторожностью, так как канальный электронный умножитель детектора может получить физическое повреждение при высоких напряжениях ВЭУ.

По результатам проделанной работы, с учетом вышеописанных предложений, была разработана методика проведения экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива.

Порядок проведения эксперимента

Краткое описание (процедура) проведения эксперимента представлено ниже:

- МС и модуль TGA/DSC 3+ должны быть включены в сеть электропитания и прогреты в течение двух-трех часов до начала эксперимента;
- включаем чиллер для охлаждения, убеждаемся, что вода начинает циркулировать в системе охлаждения, по крутящему индикатору расхода воды. По скорости вращения ролика оцениваем допустимый режим охлаждения;
- конфигурация эксперимента задается в программе STAR^с программного обеспечения для модуля TGA/DSC 3+;
- устанавливается связь между программным обеспечением и модулем TGA/DSC 3+;
- на датчик TGA DSC HT устанавливается эталонный тигель, если это прописано программой эксперимента;
- исследуемый образец предварительно взвешивается;
- устанавливается необходимый расход газов (защитного, реакционного и продувочного);
- после отправки конфигурации эксперимента в буфер экспериментов окна Module Control, при нажатой кнопке [Autostart] в диалоговом окне Configuration окна Module Control, эксперимент начнется автоматически. Если эксперимент автоматически не запускается, нажимаем кнопку [Start] в правом нижнем углу окна Module Control;
- ждем, пока температура измерительной ячейки достигнет температуры ввода образца;
- нажимаем кнопку [Furnace] на терминале SmartSens, чтобы открыть печь;

- пользуясь пинцетом, осторожно загружаем тигель с образцом на датчик модуля TGA/DSC 3+;
- нажимаем [Furnace] на терминале SmartSens, чтобы закрыть печь;
- нажимаем [Proceed] на терминале SmartSens. Ждем, когда температура печи модуля ТГА достигнет начальной температуры, пройдет стадию стабилизации и приступит к измерению. По окончании измерения печь модуля ТГА достигает конечной температуры;
- дожидаемся, чтобы измерительная ячейка остыла до температуры удаления образца;
- нажимаем [Furnace] на терминале SmartSens, чтобы открыть печь;
- пользуясь пинцетом, осторожно извлекаем тигель с образцом и ставим его в лоток для тигля;
- нажимаем [Furnace] на терминале SmartSens, чтобы закрыть печь;
- эксперимент завершен. Модуль ТГА переходит в состояние, характеризующееся параметрами окончания эксперимента. По умолчанию измерительная ячейка остывает до температуры ввода образца.

Обработка и анализ полученных результатов

Проверка образца по окончании измерения

Исследуемые образцы следует взвешивать на стационарных весах, входящих в состав экспериментального комплекса ТиГрА, до и после проведения термогравиметрических измерений. Снижение массы образца указывает на то, что в ходе анализа шли процессы испарения или разложения, которые, в свою очередь, сказываются на получаемых термограммах.

Существенную помощь при интерпретации результатов термического анализа может оказать внешний осмотр образца по окончании измерения. Здесь следует обратить внимание на следующие факторы:

- изменился ли цвет образца;
- подплавился ли образец;
- поменял ли образец форму?

Ответ на эти вопросы может помочь лучше понять и объяснить эффекты, наблюдаемые в эксперименте.

Обработка результатов измерения

Информация о ходе проведения экспериментов обрабатывается по результатам ИИС и выдается в виде таблиц физических величин или графической информации и хранится на жестком диске компьютера, входящего в состав установки ТиГрА. Данные таблиц являются исходным материалом для расчетного анализа результатов испытаний.

На экран монитора с ПО выводится информация о параметрах и условиях выполняемого эксперимента, также одновременно выводятся диаграммы термогравиметрического анализа, теплового потока и масс-спектрометрии.

По завершению эксперимента все данные дополнительно обрабатываются при помощи программ Microsoft Excel и Origin.

6.5 Отработка методики экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива

Заключительным этапом НИР в 2019 г было проведение на исследовательском комплексе ТиГрА эксперимента по отработке предложенной методики на примере образца высокочистого изотропного мелкозернистого реакторного графита марки IG-110, массой 403,2 мг.

Исследуемый образец и условия проведения методического эксперимента

В методическом эксперименте использовался графит марки IG-110, который был изготовлен методом горячего изостатического прессования. Характеристики графита приведены в таблице 6.4.

Таблица 6.4. Основные характеристики исследуемого образца

Параметр	Значение
Размер, мм	5×5×9
Масса, мг	403,2
Плотность, г/см ³	1,78
Прочность на изгиб, МПа	39
Твердость	51 (по Шору)
Масса образца, г	~ 1 г
Примеси, ppm	2~3

Ниже на рисунке 6.10 представлен общий вид образца с керамическим алундовым тиглем ТГ-анализатора.

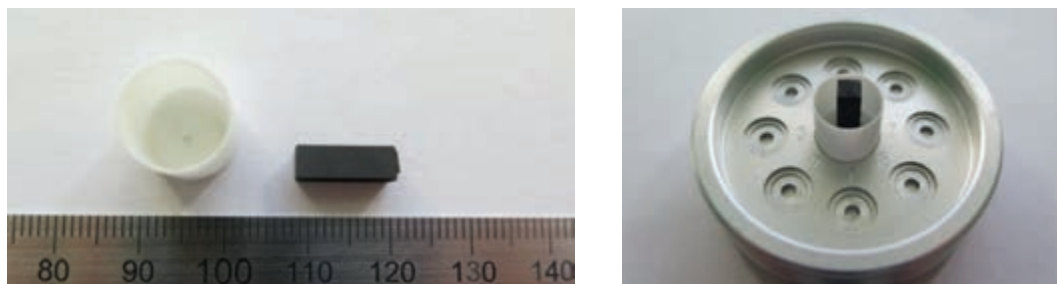


Рисунок 6.10. Общий вид образца и тигля печи ТГ-анализатора (объемом 900 мкл), используемого в методическом эксперименте

Условия проведения эксперимента были следующими:

- датчик анализатора – сенсор TGA SDTA HT;
- тигель – тигель из оксида алюминия, объемом 900 мкл;
- максимальная температура нагрева образца – 1100 °С;

- скорость нагрева образца – 15 °С/мин;
- время изостатического сегмента – 10 мин;
- среда – воздух;
- газ продувки весовой ячейки – гелий чистотой 99,99%;
- время прогрева масс-спектрометра перед экспериментом – не менее 90 мин;
- температура линии подачи газов в масс-спектрометр – 150 °С;
- температура линии подачи газов на входе в масс-спектрометр – 120 °С.

Порядок проведения эксперимента

Порядок проведения методического эксперимента заключался в следующем:

- после прогрева оборудования до рабочей температуры, образец исследуемого графита был вертикально установлен в тигле и вместе с тиглем загружен на платиновую подложку керамического TGA SDTA HT сенсора (рисунок 6.11);



Рисунок 6.11. Реакционная камера ТГ-анализатора с исследуемым образцом

- после загрузки образца, камера печи ТГ – анализатора закрывалась, и весовая ячейка на протяжении одного часа продувалась гелием с расходом 40 мл/мин. Поступление газа в реакционную камеру происходило через специальное отверстие керамического TGA SDTA сенсора. Подача газа с заданным расходом и составом обеспечивалась встроенным газовым контроллером аналитического прибора TGA-DSC 3+;
- далее образец подвергался линейному нагреву до температуры 1100 °С со скоростью 15 °С /мин;
- при достижении температуры образца 1100 °С был проведен высокотемпературный отжиг образца на протяжении 5 мин;
- после отжига образец линейно остывал до температуры извлечения образца из реакционной камеры ТГ-анализатора.

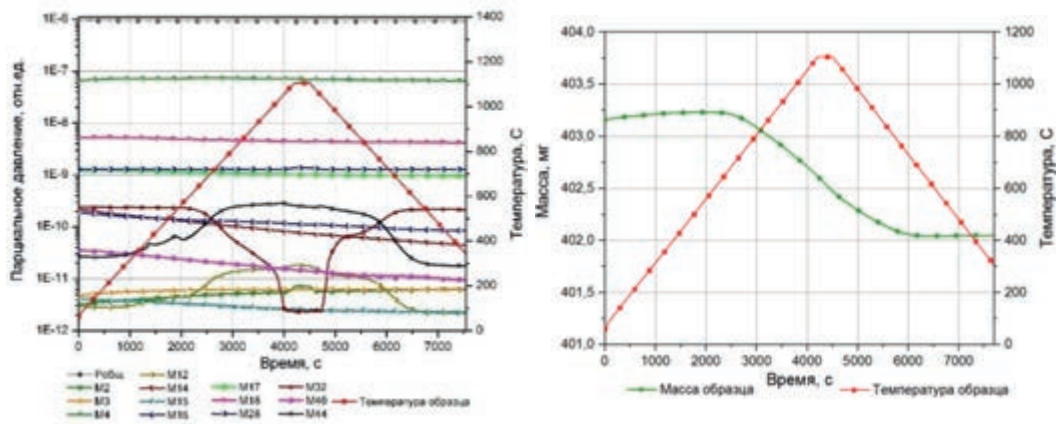
На всем протяжении эксперимента осуществлялась регистрация газового состава в реакционной камере ТГ-анализатора, изменение массы образца, теплового потока и температуры образца с помощью специального программного обеспечения МС и термогравиметрического модуля TGA/DSC 3+.

Результаты методического эксперимента

По завершению эксперимента данные МС и ТГ-анализатора синхронизируются по времени при помощи Microsoft Excel и строится общая диаграмма, на которой отображаются:

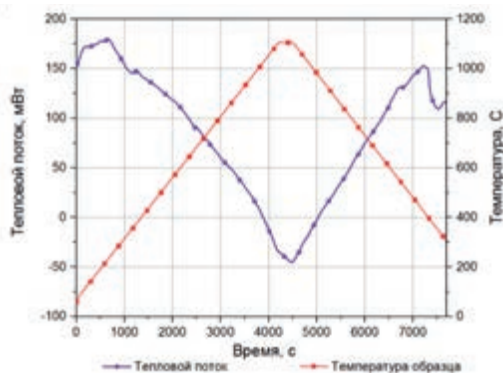
- изменение температуры исследуемого образца;
- изменение состава газового потока в камере с образцом;
- изменение массы образца;
- скорость изменения теплового потока на образец во время эксперимента.

Результаты методического эксперимента представлены ниже на рисунке 6.12.



а) зависимость изменения парциальных давлений газов в объеме над образцом

б) зависимость изменения массы образца



в) зависимость изменения теплового потока образца в процессе нагрева

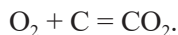
Рисунок 6.12. Результаты методического эксперимента

На рисунке 6.12а представлена зависимость изменения парциальных давлений газовых соединений в процессе эксперимента. На данном рисунке отображены зависимости изменения наиболее выраженных масс, присутствующих в системе

газов: M2 – водород (H₂⁺); M3 – фрагмент молекулы водорода (H₃⁺); M4 – гелий (He⁺); M12 – углерод (C⁺); M14 – углеводородное соединение (CH₂⁺) и фрагмент молекулы азота (N⁺); M15 – углеводородное соединение (CH₃⁺); M16 – углеводородное соединение (CH₄⁺) и фрагмент молекулы воды – кислород (O⁺); M17 – фрагмент молекулы воды (OH⁺); M18 – молекула воды (H₂O); M28 – окись углерода (CO⁺) и углеводородное соединение (C₂H₄⁺); M32 – кислород (O₂⁺); M40 – аргон (Ar⁺); M44 – двуокись углерода (CO₂⁺) и углеводородное соединение (C₃H₈⁺).

Если на рисунке 6.12а оставить только массы элементов, вступающих в химическое взаимодействие (H₂ – M2, CO – M28, O₂ – M32 и CO₂ – M44), то будет получена следующая картина (рисунок 6.13).

Визуально весь масс-спектр (рисунок 6.13) можно разбить на 5 интервалов. Анализируя полученный спектр кривых изменения масс, можно увидеть, что в интервале I с повышением температуры до 400 °С графит практически не вступает в химическое взаимодействие. Но при дальнейшем повышении температуры с переходом в интервал II видно, как начинается реакция взаимодействия графита с кислородом, об этом свидетельствует уменьшение M32. Как видно, при уменьшении содержания кислорода происходит стремительное увеличение M44, которая является двуокисью углерода. Исходя из этого, можно предположить, что при повышении температуры до 600 °С начинается процесс химического взаимодействия графита с кислородом, согласно реакции (2)



При переходе в интервал III и достижении температуры 1100 °С, можно заметить небольшой провал 44 массы и увеличение 28 массы. Данные изменения свидетельствуют о смене механизма реакции графит-кислород и образовании монооксида углерода, согласно реакции (1)

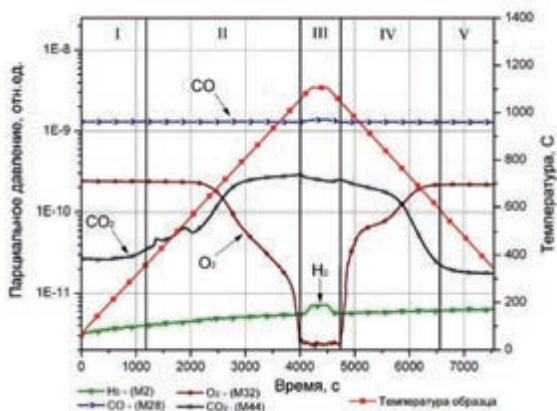
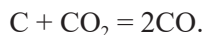
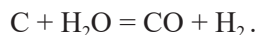


Рисунок 6.13. Зависимость изменения парциальных давлений газов в результате химического взаимодействия с образцом

Также на данном интервале при температуре около 1100 °С есть вероятность образования части СО в результате взаимодействия двуокси углерода с графитом, реакция (3)



При температуре 1100 °С во время термической полки можно заметить еще один химический процесс, связанный с увеличением М2. Водород в данном случае является продуктом химической реакции графита с остаточными парами воды, присутствующими в атмосфере, реакция (4)



С уменьшением температуры образца примерно до 1000 °С и переходе в интервал IV видно, как провал по М44 и увеличение М28 пропадает. Так же происходит постепенное увеличение кислорода и снижение парциального давления двуокси углерода и водорода. Это связано с тем, что с понижением температуры равновесие протекающих химических реакций смещается в сторону образования исходных веществ.

При дальнейшем снижении температуры наблюдается затухание химических реакций и при температуре около 500 °С после перехода в интервал V видим, как парциальные давления всех газов выравниваются и выходят на начальный уровень.

Благодаря данным масс-спектрометрии можно сделать выводы о том, вследствие каких процессов происходит процесс высокотемпературной коррозии реакторного графита IG-110.

Исходя из данных ТГ – анализа (рисунок 6.14), можно с высокой точностью определить, при каких температурах происходит потеря массы образца и дать количественную оценку. Видно, что в начале процесса линейного нагрева до 620 °С происходит небольшой рост массы, это характеризуется тем, что идет процесс адсорбции окислителя на поверхность исследуемого образца. При дальнейшем повышении температуры видно, как начинается процесс коррозии образца, который сопровождается потерей массы, вследствие образования газообразных продуктов реакций. С повышением температуры повышается и скорость коррозии, при снижении температуры происходит обратный процесс. При охлаждении образца приблизительно до температуры 620 °С масса исследуемого образца перестает меняться, реакции химической коррозии прекращаются. Потеря массы за время проведения эксперимента составила 1,11 мг.

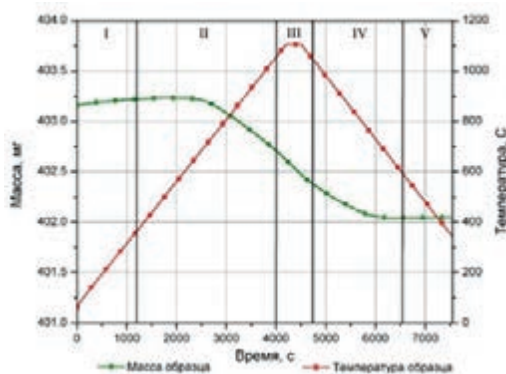


Рисунок 6.14. Изменение массы образца за все время эксперимента

С помощью метода ДСК анализа была получена зависимость изменения теплового потока образца в процессе нагрева (рисунок 6.15). Анализируя полученную зависимость, можно отметить, что сначала тепловой поток падает. Данное падение характеризуется тем, что тепло от печи направлено на нагрев образца. В процессе нагрева образца при температуре, примерно 400 °С виден небольшой пик. Данный пик свидетельствует о том, что происходит реакция химического взаимодействия кислорода и графита, которая является экзотермической.

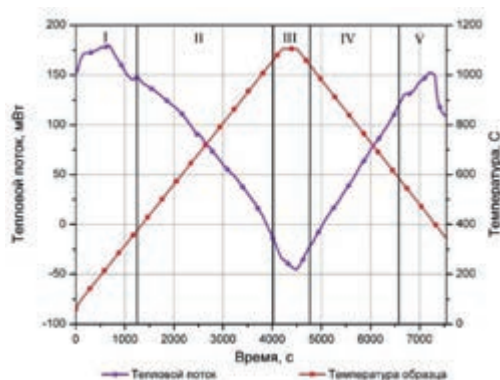


Рисунок 6.15. Зависимость изменения теплового потока образца за все время методического эксперимента

Так как реакции окисления являются экзотермическими, в связи с этим на кривые изменения теплового потока виден небольшой рост от 600 °С до 1100 °С. При выходе на температурную полку 1100 °С прослеживается изменение кривой теплового потока, это может быть связано с тем, что при данной температуре начинают протекать реакции химического взаимодействия графита с парами воды и двуокисью углерода, которые, в свою очередь, являются эндотермическими. В процессе охлаждения тепловой поток стремительно начинает расти, это обусловлено тем, что тепло от образца выделяется в систему.

Таким образом, экспериментальные данные, полученные в методическом эксперименте с образцом высокочистого изотропного мелкозернистого реакторного графита марки IG-110, полностью подтвердили применимость разработанной методики и позволяют в полном объеме описать процессы, происходящие при взаимодействии газов и парогазовых смесей с графитовыми материалами ЯР.

6.6 Изготовление исследуемых образцов для проведения экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива

Исходным материалом для проведения исследований процессов высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива был выбран необлученный топливный элемент ВОУ-топлива активной зоны реактора ИГР. Основные характеристики опытного элемента с ВОУ-топливом представлены в таблице 6.5 (см. стр. 230).

Таблица 6.5. Основные характеристики элемента с ВОУ-топливом

№ п/п	Наименование параметра	Значение параметра
1	Материал	Графит марки 11-03
2	Топливо	Уранилдинитрат
3	Обогащение урана изотопом урана-235, %	90
4	Концентрация урана в графите, г/кг	3,1
5	Плотность топлива, г/см ³	1,71
6	Открытая пористость, % объем	12

Изготовление опытных образцов проводилось в три этапа:

- вырезка заготовок из топливного элемента;
- разделка заготовки на образцы;
- нанесение маркировки на образцы.

Вырезка заготовок из топливного элемента

Вырезка заготовок из топливного блока осуществлялась без применения смазочно-охлаждающей жидкости на ручном ленточнопильном станке JET J-351V, установленном в герметичном перчаточном боксе (рисунок 6.16).

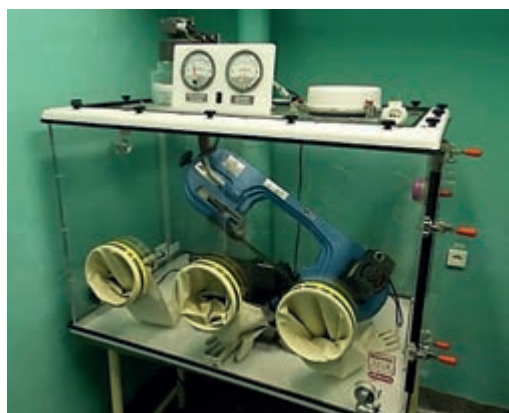


Рисунок 6.16. Ручной ленточнопильном станок JET J-351V

Процедура вырезки заготовок из блока предусматривала вырезку фрагмента с одной из сторон блока. При этом, перед вырезкой фрагмента, осуществлялось снятие поверхностного слоя толщиной 3 мм. Толщина фрагмента после вырезки составила от 8 мм до 8,5 мм.

Разделка заготовки на образцы

Разделка заготовки на образцы выполнялась в герметичном перчаточном боксе на гравирувально-фрезерном станке Sicono SIC330 в режиме 3D-фрезерования (рисунок 6.17), при этом были проведены следующие процедуры:

- выравнивание поверхности с целью сохранения плоскопараллельности заготовки с заданной толщиной и уменьшения степени шероховатости на обратной стороне;
- вырезка отдельных образцов различных типов и форм с напуском на последующий их излом (фрезерование) с применением торцевой фрезы размером 2 мм;
- разделение образцов из заготовки.

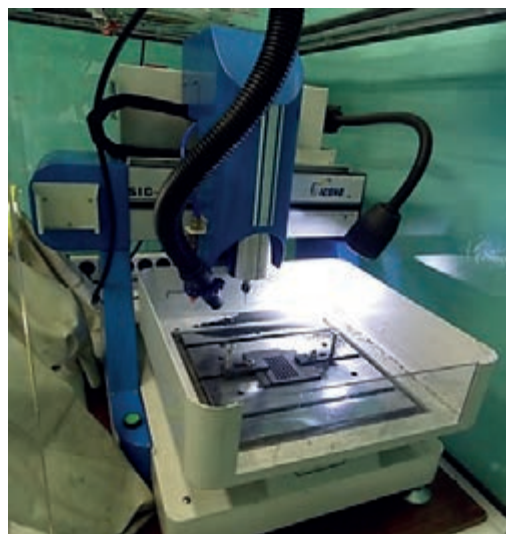
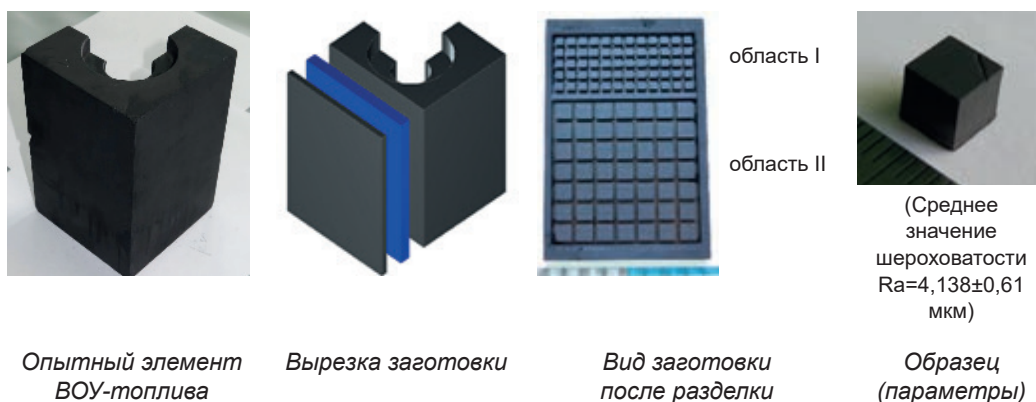


Рисунок 6.17. Гравировально-фрезерный станок Sicono SIC330

Эскиз схемы резки фрагмента выполнялся в программной среде «AutoCAD», и затем этот проект переносился в программу «ArtCAM», в которой формируются управляющие программы резки для фрезерного станка.

Подробная схема разделки необлученного топливного элемента приведена в таблице 6.6.

Таблица 6.6. Этапы изготовления исследуемых образцов



Нанесение маркировки на образцы

Нанесение меток на образцы производилось вручную конусной фрезой в одном из углов каждого образца, место размещения метки показано в таблице 6.6. Данная процедура необходима для определения пространственного расположения образца в исходном элементе при дальнейших испытаниях.

Геометрические размеры полученных образцов определялись цифровым штангенциркулем с точностью 0,01 мм. Измерение массы образцов проводилось на аналитических весах с дискретностью показания 10 мкг с округлением до 10^{-4} г.

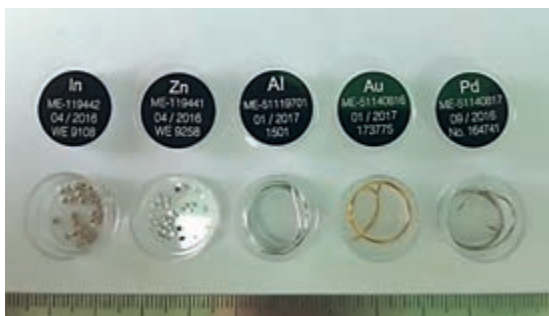
Таким образом, для проведения экспериментов по исследованию высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива было подготовлено и отобрано шесть образцов ВОУ-топлива. Образцы для экспериментов на комплексе ТиГрА были отобраны из области I (таблица 6.6) и имели форму куба с размерами $5 \times 5 \times 5$ мм. Максимальное отклонение фактических геометрических размеров от номинальных значений не превышает 4%. Значения масс и геометрических размеров образцов приведены в таблице 6.7.

Таблица 6.7. Геометрические размеры и массы исследуемых образцов ВОУ и НОУ топлива

Наименование образцов	Сторона, мм			Масса, г
	a	b	c	
Образец 5-45	4,88	4,89	4,89	0,189
Образец 5-46	4,89	4,89	4,92	0,204
Образец 5-47	4,91	5,05	4,90	0,207
Образец 5-54	4,89	4,89	4,92	0,204
Образец 5-55	4,90	4,90	4,91	0,205
Образец 5-56	4,91	5,05	4,92	0,211

6.7 Подготовка (калибровка) экспериментального комплекса ТиГрА к экспериментам

Перед проведением экспериментов по исследованию высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива для корректной работы аналитического модуля TGA/DSC 3+ комплекса ТиГрА необходимо было провести ряд калибровочных экспериментов с использованием эталонных образцов. В качестве эталонных использовались стандартные образцы металлов: индия (In), цинка (Zn), алюминия (Al), золота (Au) и палладия (Pd), поставляемые в комплекте с прибором. На рисунке 6.18 представлены эталонные образцы в контейнерах. Индий и цинк представляют собой маленькие гранулы, а алюминий, золото и палладий изготовлены в виде проволоки толщиной 1 мм.



а) материал эталонных образцов



б) эталонные образцы для калибровочных экспериментов

Рисунок 6.18. Внешний вид эталонных образцов

Калибровка модуля осуществлялась по трем параметрам: температуре образца, температуре печи и тепловому потоку, приходящему на образец. Процедура калибровки аналитического модуля TGA/DSC 3+ заключалась в следующем:

- 1) перед проведением калибровочных экспериментов проводились контрольные измерения масс эталонных образцов;
- 2) после прогрева модуля TGA-DSC 3+ и стабилизации весовой ячейки осуществлялась ее калибровка, при помощи встроенных эталонных гирь;
- 3) эталонный образец загружался в высокопрочный тигель из оксида алюминия;
- 4) тигель с образцом размещали на платиновую подложку керамического TGA SDTA сенсора, установленного в аналитическом приборе TGA-DSC 3+ (рисунок 6.19);



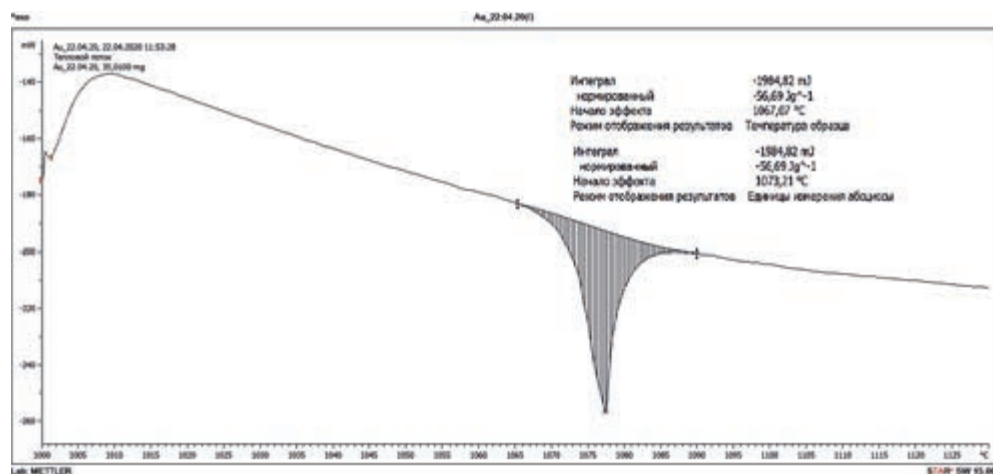
Рисунок 6.19. Образцы индия, загруженные в тигель, установленный на подложке керамического TGA SDTA сенсора модуля TGA/DSC 3+ перед калибровкой

- 5) в соответствии с выбранным материалом (эталонным образцом) оператором задавался предустановленный метод для данного материала с целью выполнения калибровки модуля в заданном температурном интервале;
- 6) полученные в результате экспериментов кривые теплового потока обрабатывались с использованием программного обеспечения STARe компании Mettler Toledo;

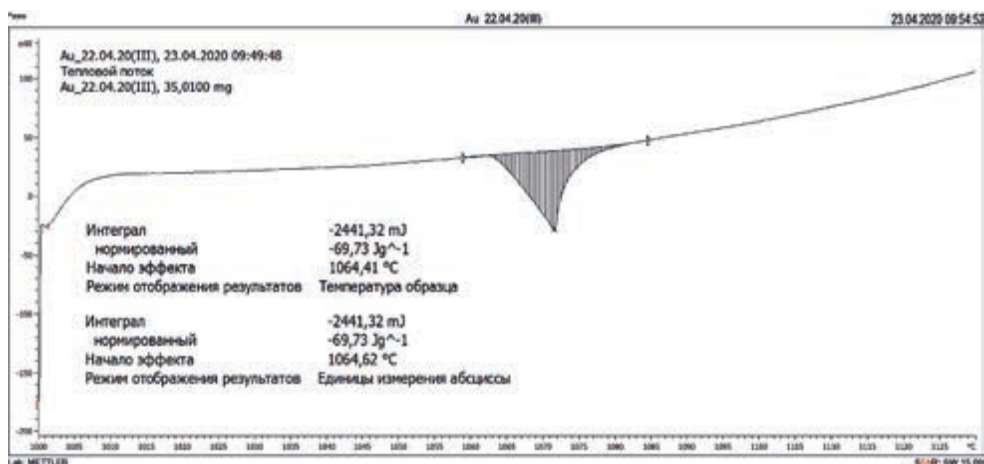
- 7) полученные в результате обработки кривой теплового потока значения температур плавления и энтальпии эталонных образцов (представленные в таблице 6.8) сравнивались с калибровочной таблицей 6.9 и заносились операторам в программу, в меню «Калибровка/Настройка» термоаналитического модуля TGA/DSC 3+;
 - 8) согласно введенным данным программное обеспечение STARe автоматически корректировало коэффициенты калибровочных уравнений;
 - 9) после изменения коэффициентов калибровочных уравнений эксперименты повторялись с целью проверки корректной работы модуля;
 - 10) в случае, если повторно полученные значения не удовлетворяли требованиям таблицы 6.9, то калибровка продолжалась согласно процедуре, описанной выше.
- На рисунке 6.20 для примера представлена обработанная кривая теплового потока, зарегистрированного в экспериментах с образцом золота, до и после калибровки.

Таблица 6.8. Данные, полученные до и после калибровки

Экспериментальные данные до и после калибровки модуля	Наименование образца	Температура плавления, °C	Температура печи в момент плавления, °C	Энтальпия, Дж/г
До калибровки	Индий	156,28	163,24	30,99
	Цинк	420,42	422,52	120,64
	Алюминий	662,56	663,59	355,30
	Золото	1067,07	1073,21	56,69
	Палладий	1550,82	1549,17	98,71
После калибровки	Индий	156,62	156,60	28,29
	Цинк	419,28	419,07	115,05
	Алюминий	660,37	660,14	389,83
	Золото	1064,41	1064,62	69,73
	Палладий	1554,39	1553,51	167,17



а) до калибровки



б) после калибровки

Рисунок 6.20. Пример обработанной кривой теплового потока для эталонного образца из золота до и после калибровки

Таким образом, в рамках работ по подготовке экспериментального комплекса ТиГрА к экспериментам по исследованию высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива в 2019 году была проведена калибровка термоаналитического модуля экспериментального комплекса ТиГрА по температуре и тепловым характеристикам пяти эталонных образцов. Повторная серия экспериментов с использованием эталонных образцов стандартных металлов подтвердила корректную работу модуля, (значения температуры плавления эталонных образцов после калибровки (таблица 6.8) соответствуют литературным данным с допустимыми отклонениями (таблица 6.9)) и готовность экспериментального комплекса ТиГрА к экспериментам с уран-графитовым топливом.

Таблица 6.9. Допустимые отклонение параметров эталонных образцов

Вещество	Литературные данные		Допустимое отклонение для термоаналитического модуля TGA/DSC 3+		
	$T_{пл}$, °С	ΔH , Дж/г	ΔT_s , °С	ΔT_p , °С	ΔHF , %
Индий	156,6	28,45	$\pm 1,5$	$\pm 2,5$	± 15
Цинк	419,5	107,5	$\pm 2,0$	$\pm 3,0$	± 15
Алюминий	660,3	397,0	$\pm 2,5$	$\pm 3,5$	± 20
Золото	1064,2	63,7	$\pm 3,0$	$\pm 4,0$	± 20
Палладий	1554,0	162,0	$\pm 4,0$	$\pm 5,0$	± 25

6.8 Эксперименты по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива

Все эксперименты по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового проводились на экспериментальном комплексе ТиГрА в соответствии с общей схемой эксперимента, представленной на рисунке 6.21 (см.стр. 236).

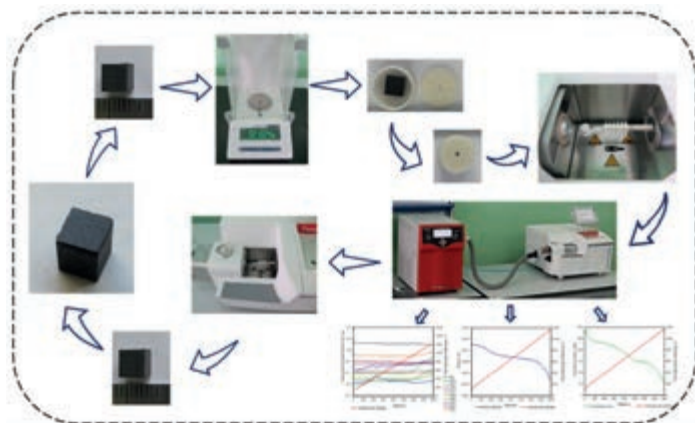


Рисунок 6.21. Общая схема проведения экспериментов с образцами ВОУ-топлива на экспериментальном комплексе ТиГра

Вначале образец взвешивался, затем загружался в алундовый тигель. Тигель с исследуемым образцом устанавливался на керамическом сенсоре анализатора TGA/DSC 3+ и проводился эксперимент по заданной оператором программе, после измерений образец выгружался, проводился его визуальный осмотр.

Исследуемый температурный интервал, скорость нагрева и охлаждения образца, а также время изостатического сегмента задавались оператором согласно программе исследований. Условия проведения экспериментов с образцами ВОУ-топлива представлены в таблице 6.10.

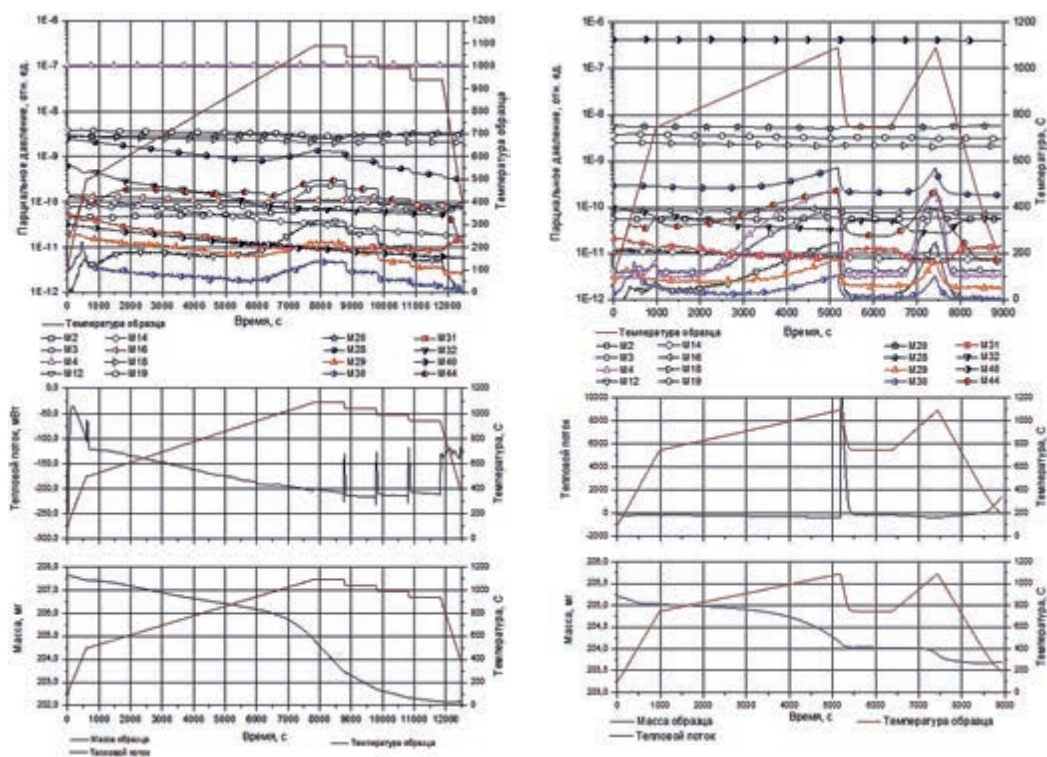
Таблица 6.10. Условия проведения экспериментов с образцами ВОУ-топлива

№ п/п	Наименование параметра	Значение параметра
1	Датчик анализатора TGA/DSC 3+	графит марки 11-03 сенсор TGA SDTA HT
2	Материал тигля (объем)	оксида алюминия (объем 900 мкл)
3	Максимальная температура нагрева образца	1100 °C
4	Режимы и скорость нагрева образцов:	линейная – 5 °C/мин; ступенчатая – 5 °C/мин, 40 °C/мин
5	Время изостатического сегмента	10 мин
6	Среда	He, He+ D ₂ O, Ar+D ₂ O и Ar+D ₂ O+(1/3 часть) H ₂ O
7	Газ продувки весовой ячейки	He или Ar
8	Время прогрева масс-спектрометра перед экспериментом	не менее 90 мин
9	Температура линии подачи газов в масс-спектрометр	150 °C
10	Температура линии подачи газов на входе в масс-спектрометр	120 °C

В результате проведенных экспериментов были получены временные зависимости изменения температуры образца, массы образца, теплового потока, приходящего на

образец и изменение состава реакционного газа (парогазовой смеси), продуваемого за все время эксперимента. На рисунке 6.22, для примера, представлены результаты экспериментов с образцами ВОУ-топлива с условной маркировкой 5-47 и 5-55 при продувке парогазовой смесью $\text{He}+\text{D}_2\text{O}$ и $\text{Ar}+\text{D}_2\text{O}$ соответственно.

На рисунке 6.22 изменение парциальных давлений газовых соединений в объеме реакционной камеры над исследуемым образцом соответствуют следующим обозначениям: M2 – водород (H_2^+); M3 – молекула HD^+ ; M4 – дейтерий (D_2^+); M12 – углерод (C^+); M14 – углеводородное соединение (CH_2^+) и азот (N^+); M16 – углеводородное соединение (CH_4^+) и фрагмент молекулы воды – кислород (O^+); M18 – молекула воды (H_2O^+); M19 – молекула HDO^+ ; M20 – тяжелая вода (D_2O^+); M28 – окись углерода (CO^+) и углеводородное соединение (C_2H_4^+); M32 – кислород (O_2^+); M40 – аргон (Ar^+); M44 – двуокись углерода (CO_2^+).



а) образец ВОУ-топлива (5-47)
в среде $\text{He}+\text{D}_2\text{O}$

б) образец ВОУ-топлива (5-55)
в среде $\text{Ar}+\text{D}_2\text{O}$

Рисунок 6.22. Результаты экспериментов с образцом ВОУ-топлива при продувке парогазовой смесью $\text{He}+\text{D}_2\text{O}$ и $\text{Ar}+\text{D}_2\text{O}$

Из представленных на рисунке 6.22 экспериментальных данных можно отметить, что существенным процессом, влияющим на химическое распыление уран-графитового топлива, является его коррозия в парах воды, которая начинается при температурах около 800°C и развивается при повышении температуры по экспоненциальному закону.

Данные о тепловом потоке в областях протекания коррозии не показывают существенных отклонений от общего тренда снижения зависимости: это свидетельствует о том, что для экспериментов с выбранными образцами нет возможности оценить теплоту взаимодействия реакционной смеси газов с поверхностью образцов методом ДСК. Данный факт понятен, так как образец имеет высокое отношение объема к поверхности, что обуславливает высокие значения теплового потока, направленного на нагрев образца и относительно низкие (в сравнении) тепловые выделения за счет реакций на поверхности. Оценка сверху теплоты реакций на поверхности составляет менее чем $500 \text{ кДж}/(\text{м}^2 \cdot \text{моль} \cdot \text{с})$.

Ниже приведен краткий анализ и обобщение результатов полученных в экспериментах по исследованию коррозии образцов ВОУ-топлива.

Коррозия уран-графитового топлива, в основном, определяется взаимодействием окислителей с углеродом на поверхности образцов. В разделе 1 настоящей главы были рассмотрены наиболее возможные реакции химического взаимодействия некоторых газов (O_2 , CO_2 , H_2 , N_2 , H_2O - паров воды) с графитовыми материалами.

Анализ экспериментальных данных, полученных в коррозионных экспериментах с образцами ВОУ-топлива, начинался с этапа калибровочных оценок абсолютных значений давлений газов в реакционной камере анализатора и сравнения зависимости снижения массы образца с зависимостью выделения углеродсодержащих молекул газов в камеру экспериментального комплекса ТиГра. На рисунке 6.23 представлена временная зависимость снижения массы образца ВОУ-топлива (образец под номером 5-55) и зависимость выделения углерода (в углеродсодержащих молекулах газов) в объем реакционной камеры, в эксперименте при продувке парогазовой смесью $\text{Ar} + \text{D}_2\text{O}$.

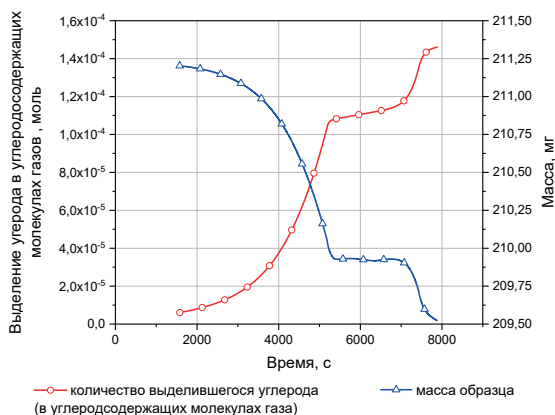


Рисунок 6.23. Снижения массы образца 5-55 и выделения углерода (в углеродсодержащих молекулах газов) из образца ВОУ-топлива за время эксперимента

Как видно из рисунка 6.23, потеря массы образца происходит в основном за счет химического распыления углерода. Углерод выделяется в виде молекул CO и CO_2 (рисунок 6.22), причем доля CO в общем выделении начинает увеличиваться при температурах от $800 - 850 \text{ }^\circ\text{C}$ и растет до максимальной температуры нагрева образца, равной $1100 \text{ }^\circ\text{C}$, достигая значения $\sim 0,7$ (рисунок 6.24).

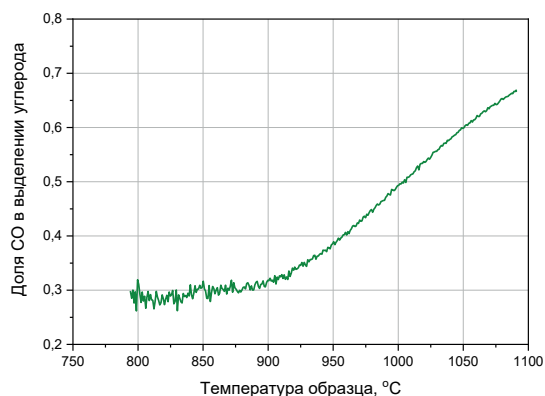


Рисунок 6.24. Температурная зависимость доли молекул CO в общем выделении углерода

Полученные данные качественно характеризуют картину коррозии следующим образом:

- 1) до температур, примерно от 800 °C до 850 °C взаимодействие уран-графитового топлива с парами воды блокируется пленкой CO, образованной на поверхности образца в результате взаимодействия его с кислородом (из-за низкой скорости десорбции молекулы CO с поверхности топлива). При этих температурах, в основном, выделение углеродсодержащих молекул происходит за счет молекулы CO₂, которая имеет более высокую скорость десорбции, но образование которой вызвано «медленными процессами»: взаимодействием С-О комплексов между собой на поверхности, и взаимодействием С-О с парами воды и остаточным кислородом в камере установки;
- 2) после достижения температур примерно 800–850 °C начинается десорбция комплексов CO с поверхности, что приводит к появлению свободных от пленки CO участков, где и происходит активное взаимодействие паров воды с поверхностью топлива;
- 3) влияние урановых соединений в образце топлива на процессы коррозии было принято незначительным: во-первых, из-за низкого количества урановых молекул (которое составляет менее 0,02% (ат.)), и, во-вторых, не удалось обнаружить в газовой смеси продуктов химических реакций паров воды с соединениями урана.

Следующим этапом в анализе экспериментальных данных были проанализированы участки, когда начинается активная коррозия уран-графитового топлива в парах воды и образование изотопов водорода.

Первоначально, был сопоставлен баланс по различным атомам, входящим в состав реакционной смеси паров воды разного изотопного состава и продуктов коррозии, полученных в ходе взаимодействия этих паров воды с образцом уран-графитового топлива.

Были построены графики температурной зависимости количества атомов кислорода, входящих в состав провзаимодействовавших молекул воды разного изотопного состава ($N_{\text{water}}(\text{O}) = N(\text{H}_2\text{O}) + N(\text{HDO}) + N(\text{D}_2\text{O})$) и атомов кислорода, входящих в состав продуктов реакции коррозии ($N_{\text{cor}}(\text{O}) = N(\text{CO}) + 2 \cdot N(\text{CO}_2)$) (рисунок 6.25). Из графика

видно, что весь кислород, входивший в состав молекул паров воды после коррозионного взаимодействия, переходит в молекулы CO и CO_2 .

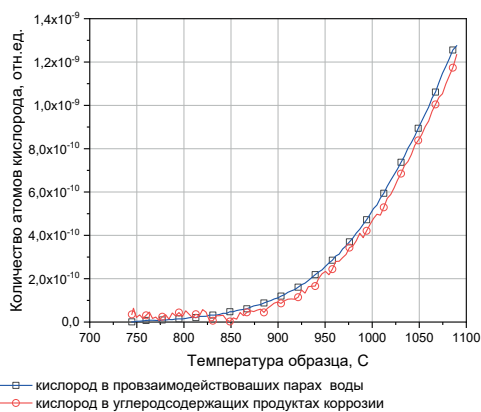


Рисунок 6.25. Баланс атомов кислорода при проведении коррозионных экспериментов с ВОУ-топливом

Другая ситуация наблюдается при анализе баланса изотопов водорода в смеси паров реакционного газа и в продуктах коррозии (рисунок 6.26). Количество атомов изотопов водорода (H , D) выделяющихся в виде молекул H_2 , HD , D_2 существенно меньше, чем количество атомов изотопов водорода, содержащихся в провзаимодействовавших с образцом парах воды. Это свидетельствует о том, что часть изотопов водорода растворяется в образце.

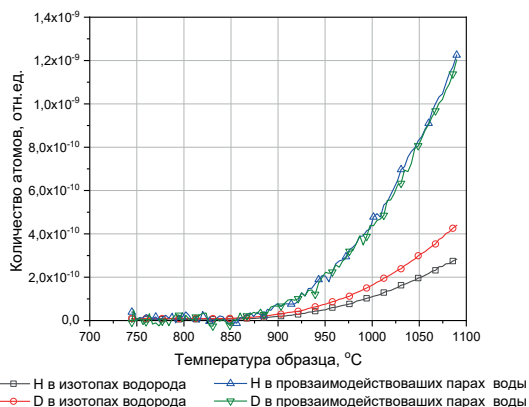


Рисунок 6.26. Баланс атомов изотопов водорода при проведении коррозионных экспериментов с ВОУ-топливом

Еще одна особенность, связанная с выделением изотопов водорода с поверхности уран-графитового топлива при коррозии, заключается в том, что количество молекул выделяемых газов H_2 , HD , D_2 – различно и непропорционально количеству молекул паров воды (H_2O , HD , D_2O) над образцом. На рисунке 6.27 приведена температурная зависимость образования молекул изотопов водорода в камере установки: она имеет

экспоненциальную зависимость и постоянное значение соотношения количества выделяемых молекул изотопов водорода (H_2 , HD, D_2) (рисунок 6.28), причем, относительная доля молекул изотопов водорода соответствует: $\delta(H_2) \sim 0,15$; $\delta(D_2) \sim 0,35$; $\delta(HD) \sim 0,5$. Здесь важно отметить, что относительная доля паров воды, в продувочном газе соответствует следующим значениям: $\delta(H_2O) \sim \delta(D_2O) \sim 0,26$, а $\delta(HDO) \sim 0,5$. Как видно, соотношение для выделяющихся молекул изотопов водорода значительно отличается от соответствующих соотношений паров воды в реакционном газе. Это означает, что реакции взаимодействия паров воды с углеродом на поверхности топлива состоят из нескольких стадий и не могут рассматриваться в рамках однофазного приближения (например, как в реакциях (11) – (13))

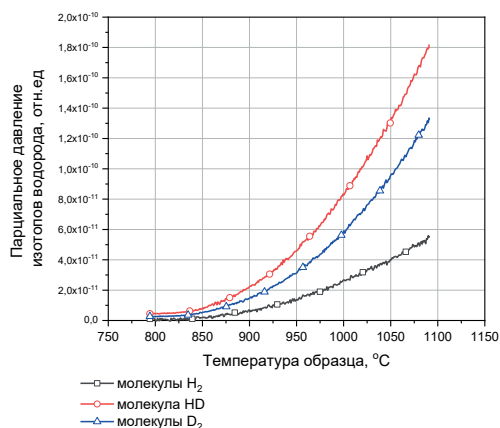
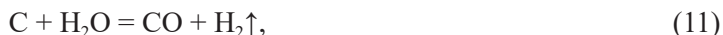


Рисунок 6.27. Температурная зависимость образования молекул изотопов водорода в реакционной камере экспериментального комплекса ТиГрА

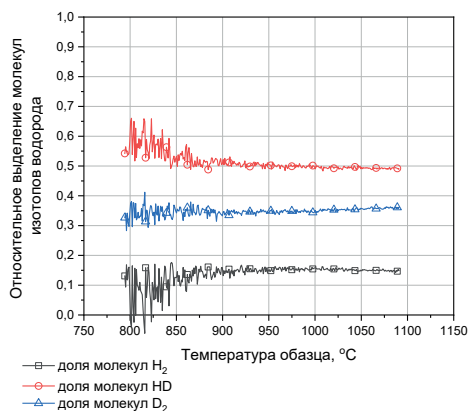


Рисунок 6.28. Температурная зависимость относительной доли молекул изотопов водорода, образующихся в реакционной камере экспериментального комплекса ТиГрА

Таким образом, обобщенный механизм коррозии уран-графитового топлива можно представить в виде схемы, приведенной на рисунке 6.29.

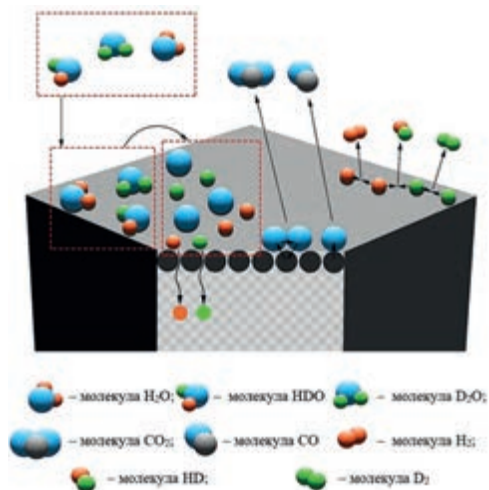


Рисунок 6.29. Схема процессов коррозии уран-графитового топлива в парах воды

Согласно представленной схеме (рисунок 6.29), механизм коррозии уран-графитового топлива протекает в следующем порядке:

- 1) первоначально молекулы паров воды (H_2O ; HDO ; D_2O) адсорбируются на поверхности образца;
- 2) затем они диссоциируют на атомы (H ; D ; O);
- 3) далее идут процессы ассоциации, десорбции молекул (CO , CO_2 , H_2 , HD , D_2), растворения в объем образца атомов (H , D).

Из полученных зависимостей были оценены параметры коррозионных процессов, которые представлены в аррениусовском виде, так как они имеют выраженную экспоненциальную зависимость от обратной температуры.

Первоначально была проведена оценка скорости химического распыления топлива (K_m), которая состоит из двух слагаемых: первое из которых связано с каналом химического распыления углерода за счет десорбции комплекса CO с поверхности образца, а второе за счет образования и десорбции молекулы CO_2

$$K_f = (385 \pm 10) \cdot e^{\frac{216 \pm 15}{R \cdot T}} + (4,9 \pm 0,2) \cdot 10^{-3} \cdot e^{\frac{108 \pm 20}{R \cdot T}}, \text{ (моль/(с} \cdot \text{м}^2 \cdot \text{Па))}. \quad (14)$$

Существенное различие предэкспоненциальных множителей и энергий активации процессов свидетельствует о том, что в первом случае процесс десорбции комплекса CO происходит по всей поверхности без дополнительных условий, в то время как второй процесс связанный – он зависит от вероятности образования CO_2 (которое происходит только в определенных местах поверхности образца, где есть расположенные на расстоянии одного атома $C-O$ комплексы) и его десорбции с поверхности.

Соответственно, предэкспоненциальный множитель первого процесса существенно выше предэкспоненциального множителя второго процесса (4). В тоже время энергия активации первого процесса больше энергии активации второго, так как вероятность десорбции молекулы СО ниже, чем молекулы СО₂ (молекула СО имеет больше связей с углеродной подложкой, чем молекула СО₂).

Далее, для оценки процессов взаимодействия изотопов водорода с топливом была составлена система уравнений баланса для концентраций атомов Н и D на поверхности топлива, при температуре Т, в предположении равновесного состояния процесса взаимодействия

$$\frac{dC_H}{dt} = \phi(H)_{cam} - \phi(H)_s - \phi(H)_v, \quad (15)$$

$$\frac{dC_D}{dt} = \phi(D)_{cam} - \phi(D)_s - \phi(D)_v, \quad (16)$$

где:

C_H, C_D – концентрации атомов водорода (H) и дейтерия (D) на поверхности образца, моль/м²;

$\phi(H)_{cam}, \phi(D)_{cam}$ – потоки атомов H и D на поверхность образца за счет процессов адсорбции и диссоциации молекул воды, моль/(с·м²) (эти потоки были оценены из анализа снижения давления паров воды в реакционной камере анализатора);

$\phi(H)_s, \phi(D)_s$ – потоки атомов с поверхности топлива в камеру установки за счет ассоциации атомов H и D на поверхности и десорбции молекул изотопов водорода, моль/(с·м²);

$\phi(H)_v, \phi(D)_v$ – потоки атомов H и D с поверхности топлива за счет их растворения в объем образца, моль/(с·м²).

Расписывая далее систему, выражения, записанные выше, примут следующий вид

$$\begin{aligned} \frac{dC_H}{dt} = & \phi(H)_{cam} - 2 \cdot K_{H_2} \cdot C_H^2 \cdot \left(1 - \frac{K_{HD} \cdot C_H \cdot C_D}{(C_H + C_D)^2} \right) - K_{HD} \cdot C_H \cdot C_D \times \\ & \times \left(1 - \frac{K_{D_2} \cdot C_D \cdot C_D}{(C_H + C_D)^2} \right) \cdot \left(1 - \frac{K_{H_2} \cdot C_H \cdot C_H}{(C_H + C_D)^2} \right) - C_H \cdot S(H), \end{aligned} \quad (17)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_D}{dt} = & \phi(D)_{cam} - 2 \cdot K_{D_2} \cdot C_D^2 \cdot \left(1 - \frac{K_{HD} \cdot C_H \cdot C_D}{(C_H + C_D)^2} \right) - K_{HD} \cdot C_H \cdot C_D \times \\ & \times \left(1 - \frac{K_{D_2} \cdot C_D \cdot C_D}{(C_H + C_D)^2} \right) \cdot \left(1 - \frac{K_{H_2} \cdot C_H \cdot C_H}{(C_H + C_D)^2} \right) - C_D \cdot S(D), \end{aligned} \quad (18)$$

где:

K_{H_2}, K_{HD}, K_{D_2} – обобщенные константы ассоциации и десорбции изотопов водорода, м²/(с·моль);

$S(H), S(D)$ – константы скорости растворения атомов H и D в уран-графитовом топливе, м/с.

Так как, начиная с температуры 900 °С и выше, температурные зависимости выделения изотопов водорода отлично повторяются для различных скоростей нагрева образца, то можно принять, что мы имеем дело с равновесным состоянием на поверх-

ности образца в эксперименте. То есть имеем, что и кроме этого, регистрируемые в эксперименте потоки газовой выделения изотопов водорода (J_{H_2} , J_{HD} , J_{D_2}) можно описать следующими уравнениями

$$J_{H_2} = K_{H_2} \cdot C_H^2 \cdot \left(1 - \frac{K_{HD} \cdot C_H \cdot C_D}{(C_H + C_D)^2} \right), \quad (19)$$

$$J_{HD} = K_{HD} \cdot C_H \cdot C_D \cdot \left(1 - \frac{K_{D_2} \cdot C_D \cdot C_D}{(C_H + C_D)^2} \right) \cdot \left(1 - \frac{K_{H_2} \cdot C_H \cdot C_H}{(C_H + C_D)^2} \right), \quad (20)$$

$$J_{D_2} = K_{D_2} \cdot C_D^2 \cdot \left(1 - \frac{K_{HD} \cdot C_H \cdot C_D}{(C_H + C_D)^2} \right). \quad (21)$$

Также можно принять, что константы $K_{H_2} = K_{HD} = K_{D_2}$. Данное утверждение следует из ранее проведенных многочисленных экспериментов с различными материалами, и физически оно означает то, что атомы водорода, дейтерия столкнувшись на поверхности материала ассоциируют (с вероятностью близкой к единице) и практически сразу десорбируют (при температурах выше 300 °C).

Решая в выбранном приближении систему из уравнений (17) и (1), был получен ряд параметров процессов взаимодействия изотопов водорода с уран-графитовым топливом:

- константа образования молекул изотопов водорода на поверхности топлива в результате коррозии в парах воды $R(H_2)$; $R(HD)$; $R(D_2)$ (таблица 6.11);
- энергии активации константы скорости растворения атомов H и D в уран-графитовом топливе $S(H)$, $S(D)$ (таблица 6.12).

Таблица 6.11. Параметры аррениусовской зависимости константы скорости образования молекул изотопов водорода на поверхности топлива

Константа образования молекул изотопов водорода на поверхности топлива	Пред экспоненциальный множитель (A), моль / (с · м ² · Па)	Энергия активации процесса (E _а), кДж/моль
$R(H_2)$	$4,76 \cdot 10^{-6}$	114
$R(HD)$	$5,68 \cdot 10^{-5}$	129
$R(D_2)$	$7,49 \cdot 10^{-5}$	136

Наблюдаемая разница в полученных параметрах носит ярко выраженный «изотопный эффект». Ожидаемо то, что энергия активации процессов взаимодействия для дейтерия выше, чем для водорода, что связано с более высокой массой дейтерия.

Таблица 6.12. Энергия активация растворения атомов изотопов водорода с поверхности топлива в объеме

Константа растворимости изотоп водорода в уран-графитовом топливе	E _а , кДж/моль
$S(H)$	114
$S(D)$	132

Более низкие значения потоков образующихся водородсодержащих газов на поверхности топлива связаны с тем, что водород быстрее, чем дейтерий растворяется в объеме

образца с поверхности топлива, соответственно его поверхностная концентрация ниже, чем у дейтерия, что приводит к более высоким значениям потоков дейтерий содержащих молекул в реакционную камеру установки.

Заключительным этапом проведённого анализа экспериментальных данных было качественное сравнение процессов коррозии уран-графитового топлива с коррозией графита марки IG-110 (образец графита был в полтора раза тяжелее образца топлива и больше по площади), рисунка 6.30.

Эксперименты с высокоплотным и мелкозернистым графитом марки IG-110 проводились по той же методике с примерно теми же давлениями паров воды. Как видно из рисунка 6.30 коррозия графита начинается при существенно более высоких температурах и протекает в целом гораздо менее интенсивно, чем коррозия уран-графитового топлива. По всей видимости, это связано с различием структуры обоих материалов. В случае уран-графитового топлива мы имеем более развитую и менее упорядоченную графитовую структуру поверхности. Это обстоятельство определяет гораздо большее количество углерода на поверхности, который имеет свободные связи за счет меньшего количества связей с углеродом «подложки». Это приводит к облегченным механизмам сорбции и диссоциации паров воды, взаимодействия углерода с кислородом, десорбции комплексов C-O с поверхности образца топлива и дальнейшему развитию поверхности. (Процесс развития поверхности образца топлива, как мы полагаем – конечен, и характеризуется наступлением квазиравновесного процесса коррозии на определенной температуре.)

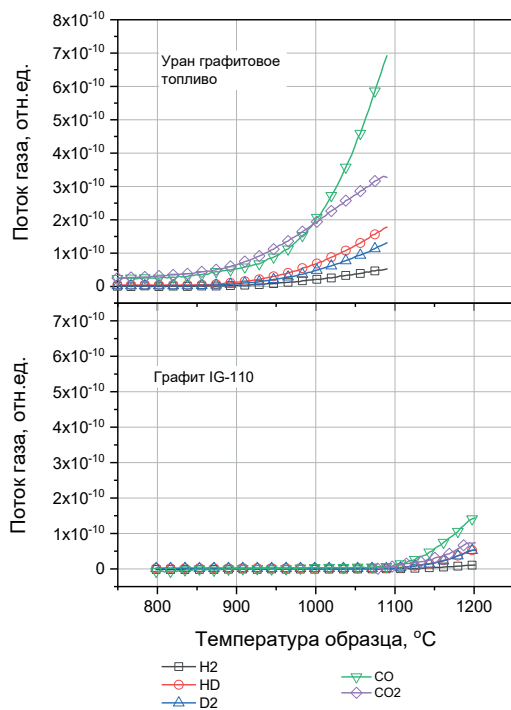


Рисунок 6.30. Сравнение выделяющихся потоков газов в процессе коррозии уран-графитового топлива и графита марки IG-110

Заключение

Подводя итоги работ, проводимых в Филиале ИАЭ РГП НЯЦ РК в рамках научно-технической программы «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан на 2018-2020 годы» по теме «Исследования физико-химических свойств ядерного уран-графитового топлива», из анализа экспериментальных данных, полученных в экспериментах с ВОУ-топливом, можно сделать следующие основные выводы:

- созданный в 2018 году экспериментальный комплекс ТиГрА позволяет за время проведения одного эксперимента одновременно реализовать три метода исследований: масс-спектрометрию, термогравиметрию и дифференциально сканирующую калориметрию. Использование комбинации ТГ-анализатора МС позволяет определять изменение массы исследуемого образца, и в то же время дает качественную информацию о продуктах, образующихся в результате высокотемпературной коррозии исследуемого материала;
- результаты методического эксперимента с образцом графита марки IG-110 подтвердили применимость разработанной в 2019 году методики проведения экспериментов по исследованию коррозии уран-графитового топлива;
- анализ результатов серии экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива с различным составом химически активных газов в реакционной камере комплекса ТиГрА (He; He+D₂O; Ar+D₂O; He+D₂O+1/3H₂O) позволил сделать следующее заключение:
 - 1) коррозия уран-графитового топлива протекает по составному механизму, который включает в себя процессы сорбции, хемосорбции паров воды на поверхности топлива, дальнейшую диссоциацию молекул воды на атомы, процессы ассоциации, десорбции молекул (CO, CO₂, H₂, HD, D₂), растворения в объем образца атомов H, D;
 - 2) потеря массы образцом при коррозии происходит в основном за счет химического распыления углерода, который выделяется в виде молекул CO и CO₂ (причем доля CO в общем выделении начинает увеличиваться при температурах от 800 – 850 °С и растет до максимальной температуры нагрева 1100 °С;
 - 3) анализ газовой выделения изотопов водорода с поверхности топлива показал, что заметное количество изотопов водорода растворяется в образце, причем наблюдается «изотопный эффект», связанный с более быстрым растворением водорода;
 - 4) расчетные оценки позволили определить ряд параметров процессов коррозии, таких как температурные зависимости константы скорости химического распыления топлива в парах воды, константы скорости образования молекул изотопов водорода на поверхности топлива, энергии активации растворения атомов изотопов водорода с поверхности топлива в объем;
 - 5) сравнительный анализ процессов коррозии уран-графитового топлива с коррозией высокоплотного мелко дисперсионного графита IG-110 показал, что коррозия топлива начинается при существенно меньших температурах и протекает более интенсивно, предположительно из-за более развитой и менее упорядоченной графитовой структуры поверхности топлива.

Таким образом, полученные в ходе работы результаты свидетельствуют о необходимости учета процессов коррозии в уран-графитовом топливе при его эксплуатации в ЯР, а определенные в работе механизмы и параметры коррозии позволяют делать прогнозы о степени разрушения топлива при его эксплуатации.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ К ГЛАВЕ 6

1. Виргильев Ю.С., Селезнев А.Н., Свиридов А.А., Калягина И.П. Реакторный графит: разработка, производство и свойства // Химия и технология углеродных материалов.– 2006. – Том L, Вып. № 1.– С. 4-12.
2. Зеленский В.Ф., Одейчук Н.П., Петельгузов И.А., Рыжов В.П., Яковлев В.К. Исследование коррозионной стойкости графитов в среде кислорода // Вопросы атомной науки и техники.– 2011.– № 2.– С. 116-122.
3. Исследования физико-химических свойств ядерного уран-графитового топлива : отчет НИР (промежуточный) / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; рук. Ю.Н. Гордиенко.– Курчатov, 2018.– 42 с.– Инв. № 0218РК00109.
4. Исследования физико-химических свойств ядерного уран-графитового топлива : отчет НИР (промежуточный) / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; рук. Ю.Н. Гордиенко.– Курчатov, 2019.– 45 с.– Инв. № 0219РК00571.
5. Исследования физико-химических свойств ядерного уран-графитового топлива : отчет НИР (заключительный) / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; рук. Ю.Н. Гордиенко.– Курчатov, 2020.– 46 с.– Инв. № 0220РК00105.
6. Физико-химические свойства графитовых материалов: литературный обзор от 31.05.2018 № 12-230-02/1302 / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК.– Курчатov, 2018.– 18 с
7. Nightingale, Ed. R. Nuclear Graphite / Ed.R. Nightingale.– New York, London: Academic Press, 1962.– 427 p.
8. Найтингел Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии. Женева, 1958 / Избранные доклады иностранных ученых. Т. 6.– М.: Атомиздат, 1959.– 454 с.
9. Родзевич, А.П. Физико-химические основы металлургических процессов: учебное пособие / А.П. Родзевич // Юргинский технологический институт.– Томск: Издательство Томского политехнического университета, 2010.– 298 с.
10. U. S. Atomic Energy Comm. HW 68933.
11. Топор, Н.Д. Термический анализ минералов и неорганических соединений / Н.Д. Топоров, Л.П. Огородова, Л.В. Мельчакова.– М.: Издательство Московского государственного университета, 1987.– 187 с.
12. Егунов, В.П. Введение в термический анализ / В.П. Егунов.– Самара, 1996.– 269 с.
13. Уэндлант, У. Термические методы анализа / У. Уэндлант.– М.: Мир, 1978.– 526 с.
14. Берг, Л.Г. Введение в томографию / Л.Г. Берг.– М.: Наука, 1969.– 395 с.
15. Синева, С.И. Влияние экспериментальных факторов на результаты определения температур фазовых превращений методом термического анализа / С.И. Синева, Р.В. Старых // Заводская лаборатория. Диагностика материалов.– 2009 – Т. 75, № 11.– С. 27-33.

Г Л А В А 7

ИССЛЕДОВАНИЕ ПЕРСПЕКТИВНЫХ МАТЕРИАЛОВ НА ОСНОВЕ СИСТЕМЫ Ti-Al-Nb ДЛЯ ХРАНЕНИЯ И ТРАНСПОРТИРОВКИ ВОДОРОДА

Кожаметов Е.Н., Мухамедова Н.М., Ерыгина Л.А., Мухамеджанова Р. М.

Введение

Как известно, дефицит ископаемого органического топлива в сочетании с растущими глобальными экологическими проблемами обусловил огромный интерес исследователей к использованию возобновляемых источников энергии. Водород как универсальный энергоноситель издавна привлекает своей экологической чистотой, гибкостью и эффективностью процессов преобразования энергии с его участием. На сегодняшний день достаточно хорошо освоены технологии производства водорода различных масштабов, имеющие практически неограниченную сырьевую базу. Однако, подавляющая часть физических и химических свойств водорода, такие как низкая плотность и температура ожигения, высокая взрывоопасность и негативное воздействие на свойства конструкционных материалов значительно препятствуют развитию водородной энергетики [1-3].

Использование водорода в качестве энергии будущего должно предусматривать реализацию простого, безопасного и экономически выгодного метода хранения и транспортировки. Для решения проблемы хранения водорода, среди методов, рассматриваемых в современной литературе, использование гидридов интерметаллических соединений (ИМС) в качестве твердотельных носителей водорода является одним из самых оптимальных и перспективных направлений. Так как гидридные фазы на основе ИМС содержат большое количество слабосвязанного и активного водорода, которое активно взаимодействует с соединениями интерметаллидов [3].

На сегодняшний день активно ведутся работы по изучению интерметаллидов на основе алюминидов титана с высоким содержанием ниобия. Так как ИМС на основе системы Ti-Al-Nb обладают не только интересными конструкционными свойствами, но и способностью поглощать водород в больших количествах и являются вполне подходящими кандидатами для решения задачи хранения водорода. Низкая плотность, безопасность и широкое распространение этих элементов делает их особенно привлекательными [4,5].

Возможность использования гидридов ИМС на основе системы Ti-Al-Nb в качестве эффективных материалов для водородной энергетики связана с задачей получения

ИМС с широким диапазоном регулируемых водородсорбционных свойств. Анализ работ, выполненных к настоящему моменту, показывает, что все еще остается много вопросов относительно фундаментальных термодинамических и структурных характеристик гидридных фаз ИМС на основе системы Ti-Al-Nb. Между тем актуальность проблемы предопределена, во многом, способностью ИМС изменять свои свойства в широком диапазоне при введении относительно небольшого количества добавок других металлов или при изменении соотношения между образующими данное соединение компонентами. Развитие и совершенствование экспериментально-теоретической базы относительно ИМС на основе системы Ti-Al-Nb позволили бы, используя данные о составе и структуре твердой гидридной фазы, планировать экспериментальные работы и намечать перспективы дальнейших исследований.

7.1 Методика получения сплава на основе системы Ti-Al-Nb

Объект исследования

Для получения пробных образцов сплава на основе системы Ti-Al-Nb методом искроплазменного спекания (ИПС) использовали следующие исходные материалы (рисунок 7.1):

- порошок титана ПТК-1 (ТУ 14-22-57-92 [6]) с размером частиц 45 – 60 мкм;
- порошок алюминия с размером частиц 5 мкм (Hongwu International Group Ltd, Китай);
- порошок ниобия НБП-1а (ГОСТ 26252-84 [7]) с размером частиц 40 – 63 мкм.

Было определено соотношение компонентов системы Ti-Al-Nb и установлено, что для получения Ti_2AlNb -фазы необходимо 55,5 масс.% титана, 23,5 масс.% алюминия и 21 ат. % ниобия.



а) титан

б) алюминий

в) ниобий

Рисунок 7.1. Исходные порошки

Для получения необходимого количества пробных образцов были использованы исходные порошки общей массой 100 г.

Механоактивация

Механоактивация порошков проводилась на планетарной мельнице Retch PM 100 СМ. Параметры проведения механоактивации приведены в таблице 7.1 (см. стр. 250).

Таблица 7.1. Параметры механоактивации

Параметр	Режим		
	МА 1	МА 2	МА 3
Ускорение, ед. g	30	30	30
Продолжительность, мин	10	20	30
Диаметр шаров, мм	10		
Количество шаров, шт	60		
Масса порошка, г	15		
Материал стакана	нержавеющая сталь		
Среда измельчения	аргон		

Искроплазменное спекание интерметаллических соединений

Эксперименты по получению компактированных порошковых смесей были проведены в Институте гидродинамики им. М.А. Лаврентьева СО РАН на установке ИПС Labox-1575 (Sinter Land Inc, Япония). Схема установки представлена на рисунке 7.2.

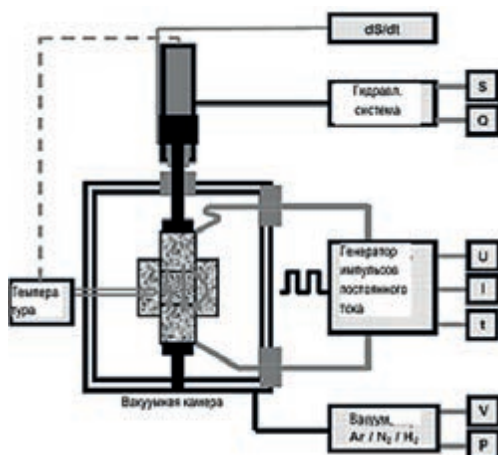


Рисунок 7.2. Принцип работы установки ИПС

В таблице 7.2 приведены технические характеристики данной установки.

Таблица 7.2. Технические характеристики установки ИПС Labox 1575

Характеристика	Значение
Максимальное усилие сжатия, МПа	150
Максимальная температура, °C	2500
Максимальный импульсный ток, А	7500
Максимальный ход по оси Z, мм	150
Рабочая атмосфера	Инертный газ, вакуум, воздух

Спекание порошков осуществляли следующим образом (рисунок 7.3). Порошковую смесь заданного состава (1) засыпали в токопроводящую графитовую пресс-форму (2) с внутренним диаметром 30 мм, которую затем помещали в вакуумную камеру установки (10^{-2} Па). Для улучшения электрического контакта подвижных частей пресс-формы (пуансонов и матрицы), а также для облегчения извлечения полученного материала из матрицы внутрь пресс-формы помещали графитовую обечайку. Графитовые пуансоны (3) также были изолированы от обрабатываемой заготовки дисками, выполненными из графитовой бумаги толщиной 0,2 мм. Для теплоизоляции наружной боковой поверхности матрицы использовали графитовый войлок. Для создания более надежного контакта между матрицей и пуансонами-электродами проводили предварительную подпрессовку порошковых смесей с усилием 4 кН.

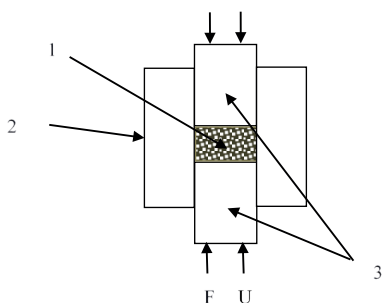


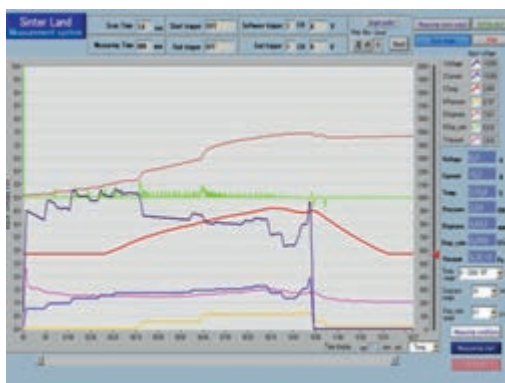
Рисунок 7.3. Схема спекания порошков

При помощи программируемого контроллера задавали программу прессования и спекания образцов. Процесс спекания контролировали в режиме реального времени с интервалом записи данных 0,5 – 5 с. Исходные данные для анализа процессов, происходящих во время спекания, были получены в текстовом формате и обрабатывались при помощи программы Microsoft Excel.

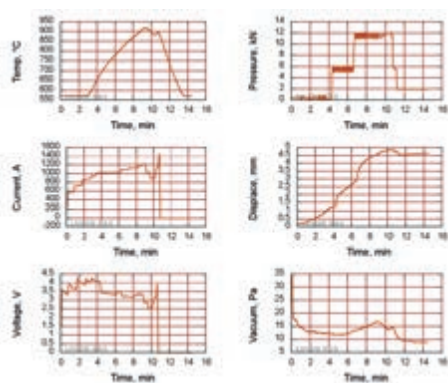
Температуру спекания контролировали термопарой (при нагреве пресс-формы до 600 °С) и пирометром (если температура нагрева превышала 600 °С). Термопара и пирометр измеряют температуру стенки графитовой пресс-формы, поэтому в зависимости от природы исследуемого материала температура заготовки может быть на 50 – 160 °С выше зафиксированных значений [8,9]. Для определения истинной температуры образца в работе [9] были проведены расчеты с использованием метода конечных элементов. Полученные результаты показали, что разница температуры между центром образца и его внешней стороной составляет 30 °С. В зоне контакта частиц порошка из-за повышенного сопротивления температура существенно превышает температуру внутри самих частиц.

Диапазон режимов спекания был выбран на основе литературных данных и рекомендаций, разработанных сотрудниками Института гидродинамики им. М.А. Лаврентьева СО РАН. Спекание шихты на основе системы Ti-Al-Nb было проведено при температурах от 800 °С до 1550 °С. Средняя скорость нагрева была равна 100 °С/мин. Во время спекания к образцам была приложена осевая нагрузка 12 кН с самого начала эксперимента. После достижения максимальной температуры спекания

образец выдерживался в течение 5 мин, после чего ток выключался. Изменение параметров режима в процессе спекания при 1100 °С представлено на рисунке 7.4. Данный режим был применен при проведении экспериментов по получению образцов при выбранных температурных интервалах. Параметры спекания приведены в таблице 7.3.



а) общие параметры в одном окне



б) параметры в раздельном виде

Рисунок 7.4. Параметры спекания образцов

Таблица 7.3. Параметры спекания

Состав шихты	Температура спекания, °С	Время выдержки, мин	Скорость нагрева, °С/мин	Нагрузка, кН
55,5 масс.% титана, 23,5 масс.% алюминия, 21 масс.% ниобия	800	5	100	12
	900	5	100	12
	1000	5	100	12
	1100	5	100	12
	1200	5	100	12
	1300	5	100	12
	1550	5	100	12

В результате были получены пробные образцы цилиндрической формы диаметром 20 мм, толщиной от 5,2 мм до 6,4 мм. Внешний вид образцов после спекания приведен на рисунке 7.5.

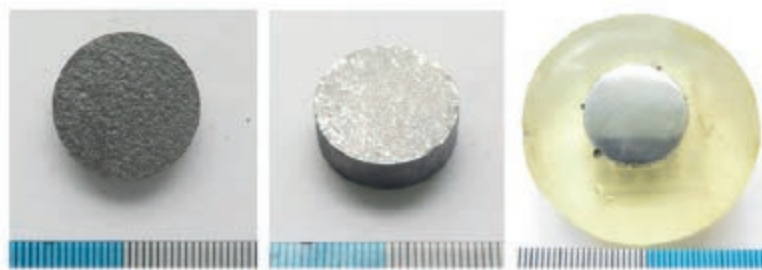


Рисунок 7.5. Внешний вид образцов после спекания и после механической полировки

Измерение микротвердости

При стандартном измерении микротвердости по Виккерсу [10] в поверхность образца вдавливают алмазный индентор в форме четырехгранной пирамиды с углом при вершине 136° . После удаления нагрузки $P = 10 - 1000$ Н, действовавшей определенное время (10 – 15 с), измеряют диагональ отпечатка d , оставшегося на поверхности образца. Число твердости определяют делением нагрузки в килограммах на площадь боковой поверхности полученного пирамидного отпечатка $HV = 1,854 P/d^2$ [11].

Измерение микротвердости образцов осуществляли на приборе типа ПМТ-3М. Принцип действия прибора основан на вдавливании алмазной пирамиды в исследуемый материал под нагрузкой равной 0,98 Н и измерении линейной величины диагонали полученного отпечатка. При исследовании металлического предмета расстояние от центра отпечатка до края предмета или между центрами соседних отпечатков составляло не менее двух диагоналей отпечатка. Диагональ отпечатка измеряли при помощи окулярного микроскопа. Микротвердость определяли по трем отпечаткам, результаты измерений усреднялись. Значение микротвердости вычисляли по формуле

$$H = \frac{1,8544 \cdot P}{C^2}, \quad (1)$$

где H – значение микротвердости, Н/мм²;

P – усилие, Н;

C – диагональ отпечатка, мкм.

Металлографический и электронно-микроскопический анализы

Приготовление металлографических шлифов осуществляли по методикам, изложенным в работах [12 – 14].

Подготовка образцов для проведения металлографического анализа включала следующие операции:

- вырезка образцов из пакетов на электроэрозионном станке;
- заливка образцов в эпоксидную или акриловую смолу;
- шлифовка поверхности образцов с применением абразивных шкур;
- полировка поверхности шлифов с использованием паст и суспензий;
- промывка и очистка в ультразвуковой ванне.

Шлифование образцов осуществляли на шлифовально-полировальном станке FORCIPOL IV. Полировку поверхности осуществляли с применением алмазных паст зернистостью 14/10 и карбид-кремниевых суспензий зернистостью 3 мкм и 1 мкм на полировочных кругах [12 – 14].

После полировки все образцы промывались в этиловом спирте, используя ультразвуковую ванну, высушивались на воздухе и до просмотра на микроскопах высокого разрешения хранились в эксикаторе. Контроль качества поверхности образцов в процессе шлифования и полировки производили на оптическом микроскопе Olympus BX41M.

Травление сплавов на основе Ti-Al-Nb проводили в реактиве 50% плавиковой кислоты (конц.) + 50% дистиллированной воды. Время травления составляло от 2 с до 5 с.

Наблюдение и фотографирование микроструктуры объектов проводили на световом металлографическом микроскопе Olympus BX41M в диапазоне увеличений от $\times 50$ до $\times 1000$. Съемка изображений выполнялась камерой AxioCam MRc5.

Исследования микроструктуры и распределения элементов по всей поверхности проводили с помощью растрового электронного микроскопа JSM-6390 с энергодисперсионным анализатором JED-2300.

Отжиг опытных образцов

Термическая обработка образцов сплава на основе системы Ti-Al-Nb была проведена в лабораторных муфельных печах SNOL-8,2/1100 (рисунок 7.6) при температуре 800°C в среде аргона. В каждой муфельной печи было расположено по два ампульных устройства, предназначенных для каждого вида испытаний.



Рисунок 7.6. Внешний вид муфельных печей

Просвечивающая электронная микроскопия

Просвечивающая электронная микроскопия (ПЭМ) – один из эффективных методов исследования структуры материалов – позволяет получать изображения с высоким разрешением (вплоть до $\sim 1 \text{ \AA}$) и определять фазовый состав, кристаллическую структуру исследуемого материала благодаря микродифракционным картинам рассеяния электронов, аналогичным картинам при рассеянии рентгеновских лучей. Однако для всех методов ПЭМ существует общее требование к толщине объектов. Обычно она не должна превышать 1000 \AA .

Для проведения исследований методом ПЭМ микрообразцы должны представлять собой тонкую пленку (фольгу) и иметь следующие размеры: диаметр не более 5 мм , толщина не более 150 нм . Подготовка микрообразцов с необходимыми параметрами включала в себя следующие этапы:

- вырезка на электроискровом станке пластин толщиной $\sim 300 \text{ мкм}$ в количестве 5 шт.;
- из полученных пластин осуществлена вырезка заготовок в форме диска диаметром 3 мм ;

- утонение дисков до толщины 100 мкм методом последовательного шлифования;
- шлифование микрообразцов с помощью димпл-гриттера «Gatan» для образования углубления – сегмент сферы толщиной 7 – 10 мкм;
- ионное утонение микрообразцов до 100 – 120 нм по всей поверхности для проведения ПЭМ исследований.

ПЭМ исследования проводили на микроскопе типа FEI Tecnai G2 20 TWIN на базе региональной университетской лаборатории инженерного профиля «ИГЕТАС» Восточно-Казахстанского государственного технического университета им. Д. Серикбаева. Для определения химического состава локальных микрообъемов использовали приставку для микрорентгеноспектрального анализа. Для идентификации фаз, присутствующих в материале, применялся дифракционный анализ с использованием темнопольной методики и последующим индцированием микроэлектроннограмм [15 –17].

7.2 Материаловедческие исследования сплава на основе системы Ti-Al-Nb

Структура сплава на основе системы Ti-Al-Nb

Результаты металлографических исследований микроструктуры образцов сплава Ti-23,5 ат.%Al-21 ат.%Nb, спеченных при температурах 800 °С и 900 °С представлены на рисунках 7.7 и 7.8 соответственно. Как видно из приведенных данных, основной структурной составляющей является неоднородная структура, содержащая частицы серого и светло серого цвета. Их размер находится в диапазоне 10 – 28 мкм. Кроме того, наблюдается значительное количество выделений черного цвета размером от 10 мкм до 60 мкм [18].

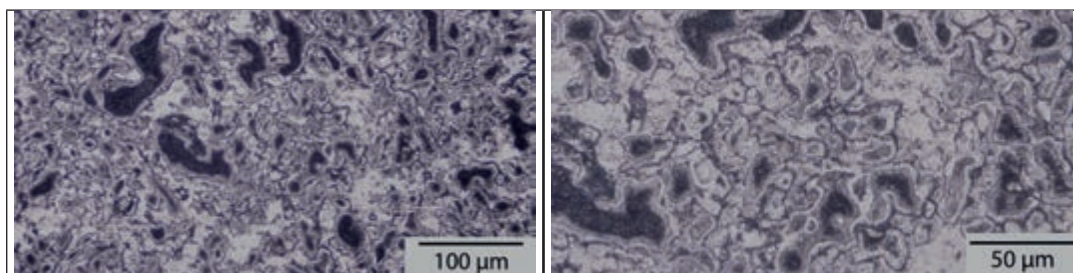


Рисунок 7.7. Микроструктура сплава, спеченного при температуре 800 °С

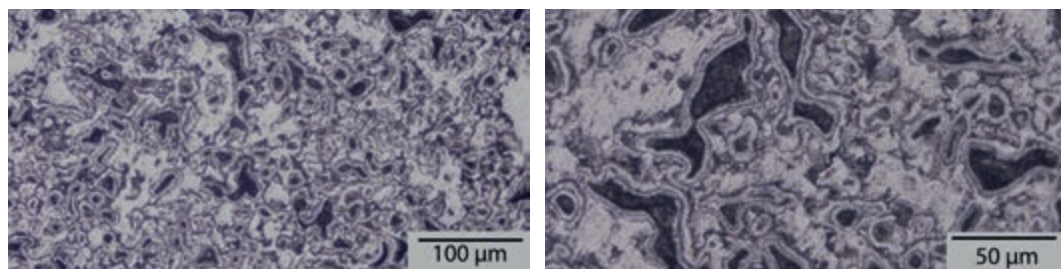


Рисунок 7.8. Микроструктура сплава, спеченного при температуре 900 °С

Для определения элементного состава фаз было проведено картирование (рисунки 7.9 и 7.10).

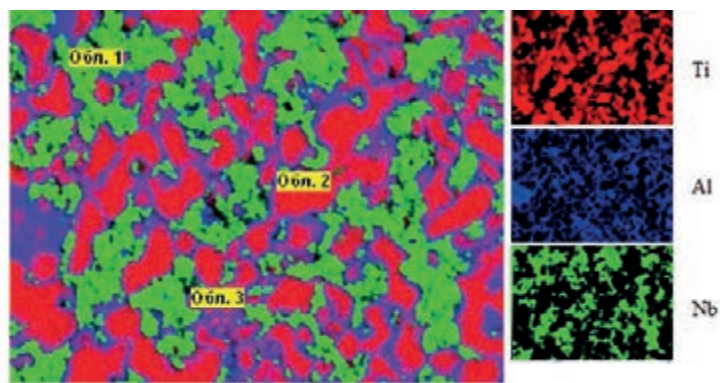


Рисунок 7.9. Результаты ЭДС-анализа сплава, спеченного при температуре 800 °С

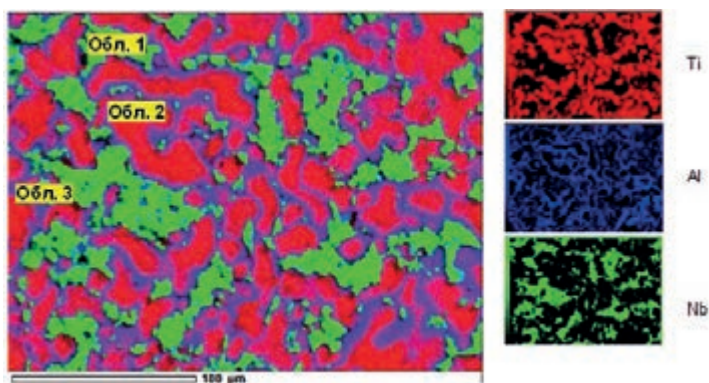


Рисунок 7.10. Результаты ЭДС-анализа сплава, спеченного при температуре 900 °С

Степень взаимодействия характеризуется образованием соединения $TiAl$ и, как минимум, твердого раствора алюминия в титане. Результаты анализа показывают наличие довольно обширных областей с усредненным составом $TiAl$. Косвенно это предположение подтверждается уменьшением содержания алюминия в композиционной структуре сплава до 17 ат.%. Если наложить карты распределения химических элементов на микроструктуру, то получим, что зеленая область состоит из ниобия, красная область - из титана, синяя область состоит из алюминия. В таблицах 7.4 и 7.5 приведены результаты локального распределения элементов в массовых и атомных соотношениях [18,19]. Как известно [1, 3], в отличие от систем с легкоплавкой эвтектикой, в системе $Ti-Al$ интенсивная экзотермическая реакция начинается при температуре плавления алюминия 660 °С, когда значительная часть алюминия уже расплавилась. Особенность системы $Ti-Al$ состоит в том, что ниже 1027 °С в данной системе происходит одностороннее растворение жидкого алюминия в твердом титане, а выше этой температуры растворимость твердого титана в расплаве заметно увеличивается. На этой стадии происходит основное превращение продукта: в расплаве алюминия

кристаллизуются зерна новой фазы TiAl и Ti₃Al. С сокращением доли расплава реакция тормозится. Изотермическое сечение диаграммы состояния Ti-Al-Nb при температуре 900 °С представлено обширными однофазными, двухфазными и трехфазными областями [20]. Область существования Ti₂AlNb-фазы расширяется и занимает площадь Ti-(25-32)Al-(14-31)Nb ат.%. При более низких температурах положение фазовых областей определить затруднительно вследствие низких коэффициентов диффузии элементов Ti и Nb в образовавшейся упорядоченной структуре. О-фаза может растворять значительные количества β-стабилизаторов, таких как Mo, Ta, Cr и V [21]. Из анализа приведенных данных видно, что полученные нами результаты анализа картирования соответствуют вышеуказанным результатам.

Таблица 7.4. Химический состав локально выделенной области сплава, спеченного при температуре 800 °С

	Ti		Al		Nb	
	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%
Обл. 1	0,58	1,09	1,04	3,47	98,38	95,44
Обл. 2	96,98	94,74	2,99	5,20	0,03	0,01
Обл. 3	54,12	47,66	28,4	44,4	17,48	7,94

Таблица 7.5. Химический состав локально выделенной области сплава, спеченного при температуре 900 °С

	Ti		Al		Nb	
	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%
Обл. 1	1,15	2,18	0,55	1,84	98,30	95,99
Обл. 2	96,04	93,96	3,28	5,70	0,68	0,34
Обл. 3	66,72	53,74	31,97	45,71	1,31	0,54

Результаты металлографического анализа свидетельствуют о том, что изменение температурного режима спекания приводит к заметному изменению микроструктуры сплава Ti-23,5 ат.%Al-21 ат.%Nb. Как видно из рисунка 7.11, микроструктура образца, спеченного при температуре 1000 °С становится более однородной по сравнению с образцами, спеченными при температурах 800 °С и 900 °С. Размер выделенной черным цветом области уменьшился до 11 – 15 мкм, а область светло серого цвета имеет размер 18 – 27 мкм [22].

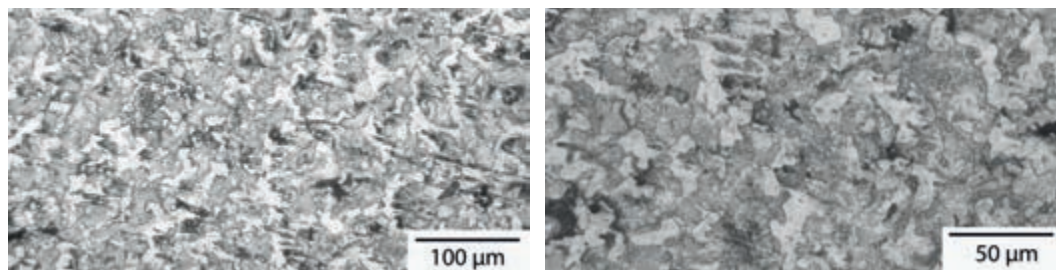


Рисунок 7.11. Микроструктура сплава, спеченного при температуре 1000 °С

На рисунке 7.12 представлены результаты оценки содержания элементов в композиционной структуре сплава Ti-23,5 ат. %Al-21 ат. %Nb, спеченного при температуре 1000 °С. Как видно из полученных карт распределения элементов в сплаве присутствуют области, существенно обедненные и обогащенные тем или иным элементом. Причем наибольшая неоднородность наблюдается в областях с содержанием ниобия 93,34 ат. %, выделенных зеленым цветом (обл.1). Остальные выделенные области показывают разные соотношения элементов Ti, Al, Nb.

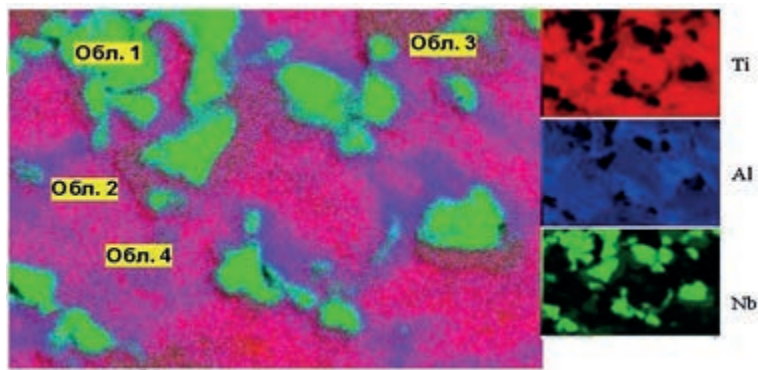


Рисунок 7.12. Результаты ЭДС-анализа сплава, спеченного при температуре 1000 °С

По результатам распределения элементов по областям, особенно по границам каждой области, приведенным в таблице 7.6, можно заключить, что спекание при 1000 °С приводит к образованию фазы взаимодействия ниобия с алюминием и титаном по границам ниобия окружающей сплошным слоем шириной 2 – 3 мкм. Элементный состав этих структурных составляющих сплава, возможно, соответствует ИМС типа Nb₃Al с частично замещенными титаном атомами ниобия и Nb₂Al с растворенным в структуре титаном. Результаты картирования в элементных соотношениях, приведенные в таблице 7.6, соответствуют составу интерметаллидной фазы Ti₂AlNb.

В работе [23] была изучена эволюция состава, микроструктуры и свойств сплавов на основе Ti₃Al в различных температурно-временных условиях. Авторы установили, что интерметаллиды начинают образовываться при 1000 °С и имеют сложное многофазное строение: идентифицированы исходные компоненты (Ti) и новые интерметаллидные фазы Ti₃Al, Ti₂Al.

Таблица 7.6. Химический состав локально выделенных областей сплава, спеченного при температуре 1000 °С

	Ti		Al		Nb	
	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%
Обл. 1	0,66	1,22	1,65	5,44	97,69	93,34
Обл. 2	77,49	69,23	18,13	28,75	4,38	2,02
Обл. 3	53,43	58,22	11,38	22,01	35,20	19,77
Обл. 4	58,06	60,12	13,41	24,64	28,53	15,23

Металлографический анализ поверхности образцов, спеченных при температурах 1100 °С, 1200 °С, показал смешанную неоднородную микроструктуру, состоящую из мелких и крупных зерен с нерегулярной пластинчатой структурой предполагаемых интерметаллидных фаз – Ti_3Al , Nb_2Al и дисперсных выделений фазы – Ti_2AlNb [18]. Также обнаружены достаточно крупные участки непрореагировавшего ниобия и титана, приведенные на рисунках 7.13 и 7.14. Следует обратить внимание на низкую скорость растворения частиц титана и ниобия при данных температурах. Нерастворившиеся частицы окружены сосредоточенной зоной мелких пор, которые возникают, вероятно, в результате неравенства коэффициентов диффузии элементов. Очевидно, диффузионный поток в основном направлен от алюминия и титана к ниобию. Атомы, которые не успевают диффундировать в алюминий и титан образуют поры.

В работе [24] был проведен анализ микроструктуры алюминидов титана, спеченных при 1200 °С. Результаты показали особенности формирования структуры при спекании композиций на основе $Ti-Al-Nb$, который содержит повышенное содержание β -стабилизирующего элемента и микроструктуру из тонких ламелей Ti_2AlNb -фазы.

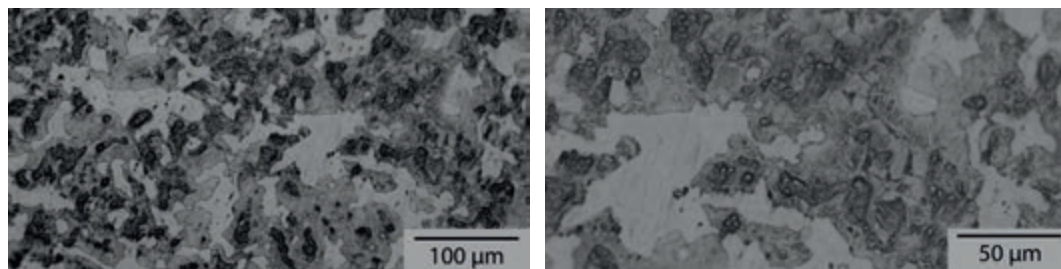


Рисунок 7.13. Микроструктура сплава, спеченного при температуре 1100 °С

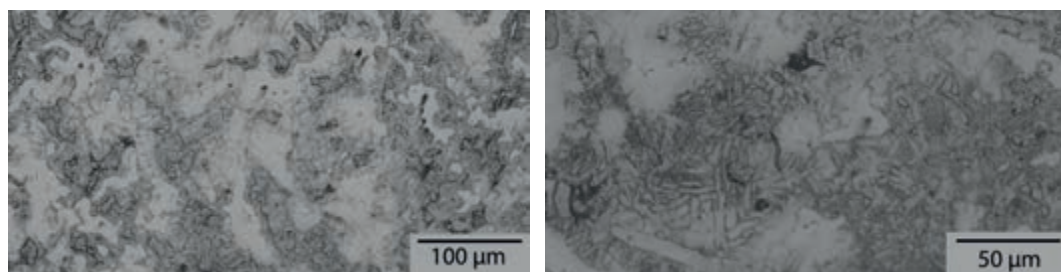


Рисунок 7.14. Микроструктура сплава, спеченного при температуре 1200 °С

Полученные результаты показывают, что увеличение температуры спекания приводит к формированию обширной структурной составляющей, полностью заполняющей микроструктуру между образованиями с высоким содержанием титана и ниобия. При анализе полученных данных электронной микроскопии и локального элементного анализа выявлена объемная неоднородность формирования идентифицированных фаз (Ti_3Al , Nb_2Al , и Ti_2AlNb – фазы) в исследуемых образцах. Полученные карты распределения элементов (рисунки 7.15, 7.16) указывают на неравномерность диффузии компонент по объему образцов. В образцах, полученных при относительно низких

температурах спекания (1100 °С, 1200 °С), присутствуют области преимущественного скопления ниобия. Поскольку температура плавления ниобия составляет 2468 °С, отсутствие его растворения при ИПС объяснимо.

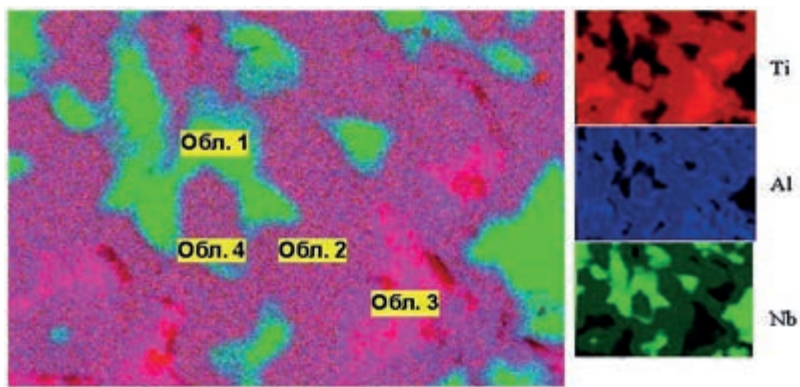


Рисунок 7.15. Результаты ЭДС-анализа сплава, спекенного при температуре 1100 °С

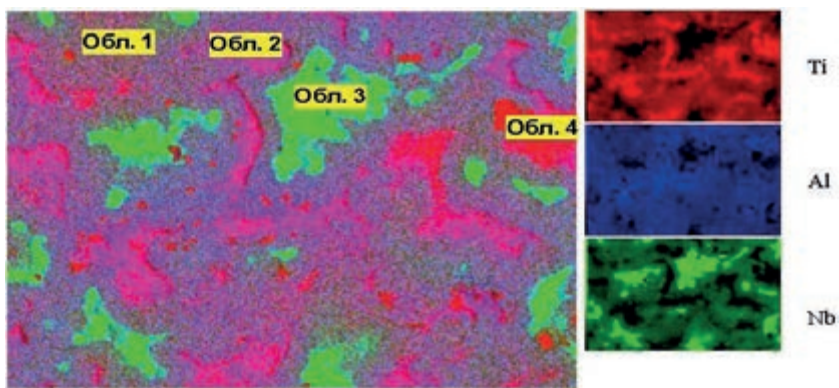


Рисунок 7.16. Результаты ЭДС-анализа сплава, спекенного при температуре 1200 °С

Анализ распределения элементного состава обл. 3 (рисунок 7.15), обл. 2 (рисунок 7.16), идентифицированные как частицы α_2 -фазы, показывает повышенное содержание титана и алюминия в соотношении 3:1. Выделенные обл. 2 (рисунок 7.15) и обл. 1 (рисунок 7.16) [18] представляют собой предполагаемую Ti_2AlNb -фазу. Также по распределению элементного состава наблюдалось совпадение соотношения элементов Nb_2Al -фазы. Элементный состав всех указанных областей приведен в таблицах 7.7 и 7.8. Видно, что при температурах 1100 °С, 1200 °С процессы диффузии ниобия в титане медленнее, чем диффузия алюминия в титан. Равновесные концентрации ниобия, содержащиеся в системе Ti-Al-Nb, не позволяют получить однородного распределения при данной температуре. Как следует из результатов распределения элементного состава, основными соединениями интерметаллидов при спекании являются фазы- Ti_3Al , Nb_2Al , Ti_2AlNb .

Таблица 7.7. Химический состав локально выделенных областей сплава, спеченного при температуре 1100 °С

	Ti		Al		Nb	
	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%
Обл. 1	0,16	0,32	0,10	0,35	99,73	99,34
Обл. 2	51,82	56,97	11,35	22,15	36,83	20,87
Обл. 3	76,35	70,56	15,61	25,61	8,04	3,83
Обл. 4	26,19	33,62	10,84	24,70	62,97	41,68

Таблица 7.8. Химический состав локально выделенных областей сплава, спеченного при температуре 1200 °С

	Ti		Al		Nb	
	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%
Обл. 1	47,77	53,66	11,37	22,68	40,86	23,66
Обл. 2	75,50	68,78	17,17	27,48	7,32	3,44
Обл. 3	0,94	1,70	2,68	8,58	96,38	89,72
Обл. 4	86,34	81,93	9,52	16,04	4,14	2,03

Исследование морфологии поверхности образцов сплава, спеченных при температурах 1300 °С, показало образование однородной lamellarной структуры, состоящей из крупных и мелких пластин [25]. По результатам исследования микроструктуры можно сказать, что образцы состоят из трех интерметаллидных фаз, которые представляют собой: Ti_3Al -фаза, темная – Nb_2Al и орторомбическая Ti_2AlNb – фаза, которая позволяет повысить пластические свойства материала (рисунок 7.17). Lamellarная структура представляет собой полностью sdвойникованные пластины γ -фазы, по границам которых расположены тонкие прослойки фазы Ti_3Al . Как известно, в зависимости от скоростей кристаллизации и охлаждения толщина γ -пластин и α_2 -прослоек может колебаться от десятых долей до нескольких микрометров [26].

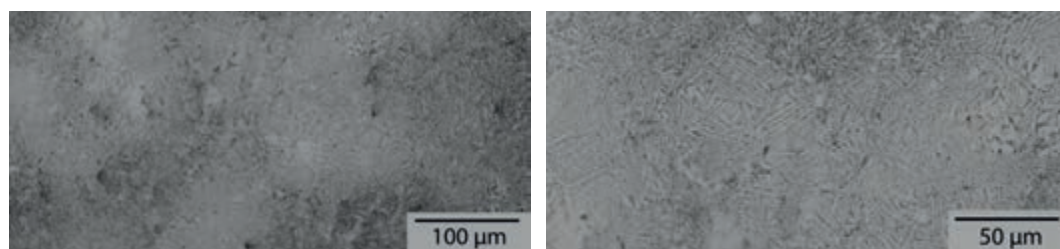


Рисунок 7.17. Микроструктура сплава, спеченного при температуре 1300 °С

На рисунке 7.18 (см. стр. 262) представлены результаты оценки содержания элементов в структуре сплавов, спеченных при температуре 1300 °С. По данным картирования на поверхности образцов уже наблюдается однородное распределение элементов в структуре сплава. Результаты анализа элементного содержания выделенной области приведены в таблице 7.9 (см. стр. 262). На основе анализа результатов картирования можно заключить, что сплав, спеченный при температуре 1300 °С содержит интерметаллические соединения Ti_3Al , Nb_2Al и Ti_2AlNb [19, 25].

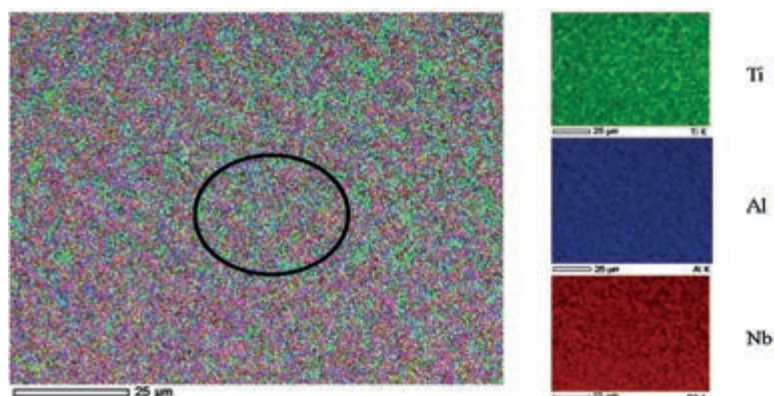


Рисунок 7.18. Результаты ЭДС-анализа сплава, спеченного при температуре 1300 °С

Таблица 7.9. Химический состав локально выделенных областей сплава, спеченного при температуре 1300 °С

	Ti		Al		Nb	
	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%	Mass%	Atom%
Обл. 1	44,95	50,80	12,03	24,03	43,02	25,07

Как известно, термическая обработка позволяет получать три основных типа структур интерметаллида на основе титана: lamellar, recrystallized and bimodal [27]. Lamellar structure represents itself completely twinned plates of γ -phase, along the boundaries of which are located thin layers of Ti_3Al . Depending on the rates of crystallization and cooling, the thickness of $TiAl$ plates and Ti_3Al layers can vary from tens of percent to several micrometers. Research of the microstructure of the alloy $Ti-23,5 \text{ at.\%Al}-21 \text{ at.\%Nb}$, sintered at $1550 \text{ }^\circ\text{C}$, showed the formation of a uniform lamellar microstructure, consisting of large and small plates, as seen in Figure 7.19. It is also visible that with increasing temperature, the effect of decreasing the average sizes of the structural components of the alloy is expressed.

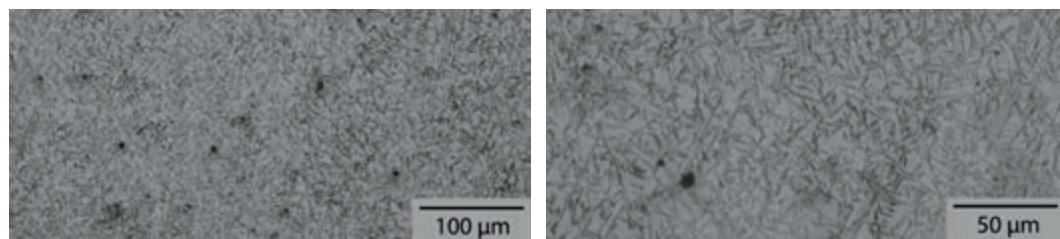


Рисунок 7.19. Микроструктура сплава, спеченного при температуре 1550 °С

On Figure 7.20 are presented the results of the analysis of the mapping of the sample $Ti-23,5 \text{ at.\%Al}-21 \text{ at.\%Nb}$, sintered at $1550 \text{ }^\circ\text{C}$. The obtained result shows a homogeneous distribution of elements in the sample. Thus, the results of the micro-X-ray spectral analysis confirm the formation of intermetallics.

Nb_2Al , Ti_3Al и орторомбической Ti_2AlNb -фазы, наблюдаемых в структуре сплава $Ti-23,5 \text{ ат.}\%Al-21 \text{ ат.}\%Nb$ после спекания при $1550 \text{ }^\circ C$ [25].

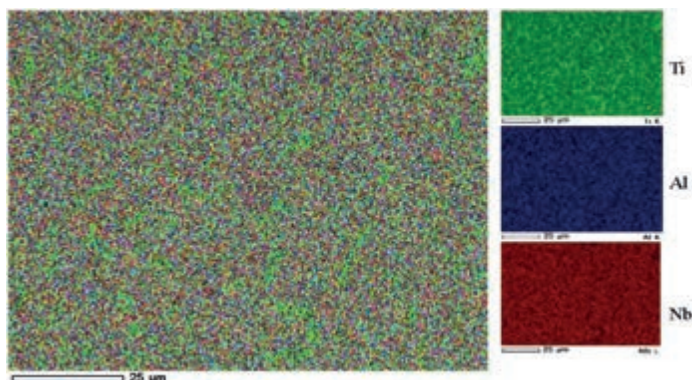


Рисунок 7.20. Результаты ЭДС анализа сплава, спеченного при температуре $1550 \text{ }^\circ C$

Проведенные исследования микроструктуры сплава $Ti-23,5 \text{ ат.}\%Al-21 \text{ ат.}\%Nb$ показывают образование lamellar микроструктуры при температурах выше $1300 \text{ }^\circ C$. Также результаты анализа карты распределения элементов указывают на активные процессы диффузии в системе $Ti-Al-Nb$ выше температуры $1300 \text{ }^\circ C$, которые приводят к образованию более однородной микроструктуры по всему объему образцов.

Твердость сплава на основе системы $Ti-Al-Nb$

Как известно, микротвердость в значительной степени зависит от содержания в основном металле различных примесей и легирующих элементов, и от искаженности кристаллической решетки. В результате проведенных исследований нами установлено, что микротвердость по Виккерсу спеченных образцов напрямую зависит от режимов ИПС. Как видно из рисунка 7.21 увеличение температуры спекания от $800 \text{ }^\circ C$ до $1500 \text{ }^\circ C$ приводит к увеличению значений микротвердости спеченных образцов, что косвенно связано с ростом плотности образцов. Максимальные значения микротвердости сплава (до $7,3 \text{ ГПа}$), выявлены в системах, спеченных при температуре $1500 \text{ }^\circ C$.

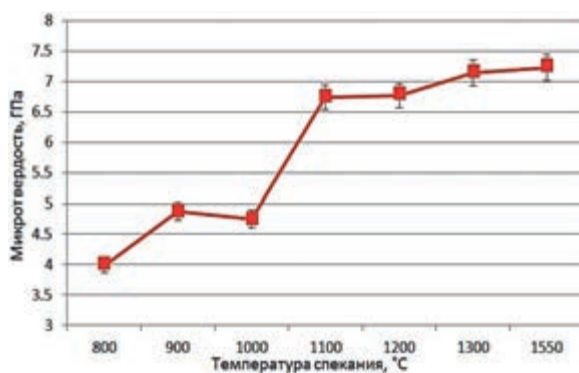


Рисунок 7.21. Влияние температуры спекания на микротвердость сплава $Ti-23,5 \text{ ат.}\%Al-21 \text{ ат.}\%Nb$

Как известно из диаграмм состояния [20,28–30], интерметаллидные фазы (Ti_3Al , $TiAl_2$ и Ti_2AlNb) начинают формироваться при 1100 °С. Очевидно, что повышенная микротвердость при температуре спекания 1500 °С связана с формированием ИМС, обладающих высокой микротвердостью.

Таким образом, методами структурно-фазового анализа доказано, что повышенное значение микротвердости образцов сплава, спеченных при температурах 1300 °С, 1550 °С, связано с образованием ряда интерметаллидных фаз Ti_3Al , Ti_2AlNb .

Влияние термической обработки на фазовый состав сплава на основе системы Ti-Al-Nb

Для получения однофазного сплава Ti-23,5 ат%Al-21,5 ат%Nb после ИПС при температуре 1550 °С была проведена термическая обработка. Отжиг заключался в нагреве образцов в среде аргона до температуры 800 °С с выдержкой при данной температуре в течение 2 ч с последующим охлаждением в печи. После отжига был проведен процесс абсорбции- десорбции водорода при температурах 450 °С; 500 °С и 550 °С. Фазовый состав сплава Ti-23,5 ат%Al-21,5 ат%Nb после спекания при 1550 °С характеризовался преимущественно трехфазностью Ti_3Al , Nb_2Al , Ti_2AlNb . Результаты рентгеноструктурного фазового анализа выявили присутствие хорошо определяемых линий орторомбической Ti_2AlNb -фазы (рисунок 7.22). Данное обстоятельство свидетельствует о хорошей степени упорядоченности структуры по трем элементам, а значит хорошей гомогенности и равновесности состава в пределах структуры. Существенным отличием фазового состава образца после отжига являлось отсутствие пиков фазы типа Nb_2Al с тетрагональной кристаллической решеткой и с гексагональной решеткой Ti_3Al фазы.

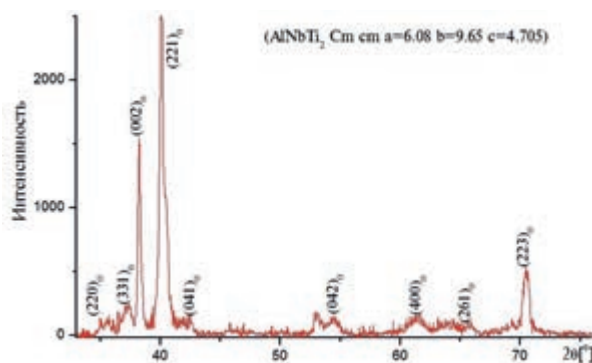
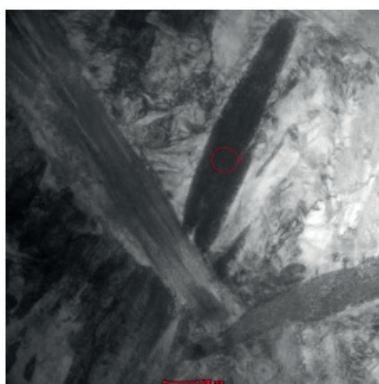


Рисунок 7.22. Результаты рентгенофазового анализа сплава Ti-23,5 ат%Al-21,5 ат%Nb после отжига при 800 °С в течение 2 ч

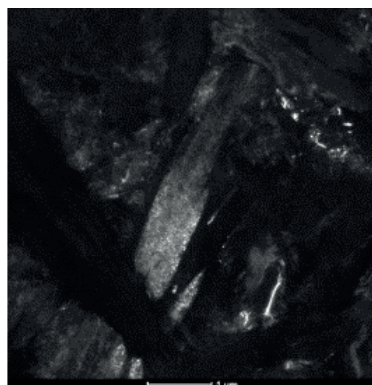
Особенностью дифракционной картины образца после отжига является существенное перераспределение интенсивности пиков, соответствующих орторомбической фазе. Пик с максимальной интенсивностью (с индексом Миллера <221>) показал низкую интенсивность на 25 – 50%, что отличается от дифракционной картины этой фазы до отжига (рисунок 7.22). Рентгеноструктурные исследования сплава Ti-23,5 ат.%Al-21,5 ат.%Nb после отжига при 800 °С в течение 2 ч с последующим

охлаждением в печи дали возможность сделать заключение об идентичном состоянии Ti_2AlNb -фазы. Таким образом, отжиг сплава $Ti-23,5at.\%Al-21,5at.\%Nb$ позволяет достичь однородной структуры.

Исследования на просвечивающем электронном микроскопе предоставили дополнительную информацию об изменениях структуры сплава $Ti-23,5 at.\%Al-21,5 at.\%Nb$ после отжига при $800\text{ }^\circ C$. По результатам ПЭМ-анализа образца было выявлено, что после отжига $800\text{ }^\circ C$ формируются две фазы: Ti_3Al и Ti_2AlNb . Однако, пластинчатая структура в этом случае не выражена, и отдельные области разных фаз представляют собой вытянутые области со средним отношением сторон 2:1. Очевидно, что некоторое повышение температуры будет приводить к удлинению сформированных областей. Внутреннее строение областей обычно неоднородно. В ряде случаев структура области представляет собой набор пластин, толщина которых не превышает десятков нанометров. Это видно по удлинению рефлексов на электронограммах (рисунки 7.23 – 7.26 на стр. 265 - 268). Такое тонкопластинчатое строение встречается в обеих обнаруженных фазах.



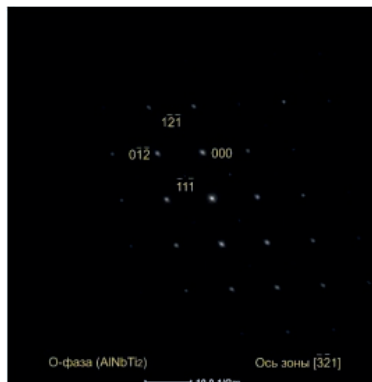
а) изображения в светлом поле и участок, с которого была снята дифракция



б) микрофотография в темном поле

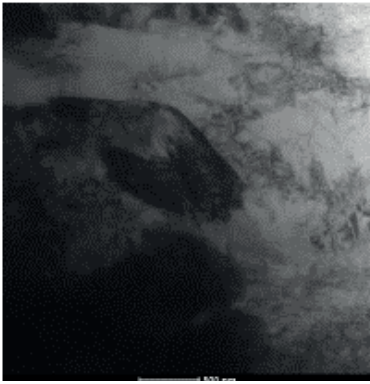


в) электронограмма

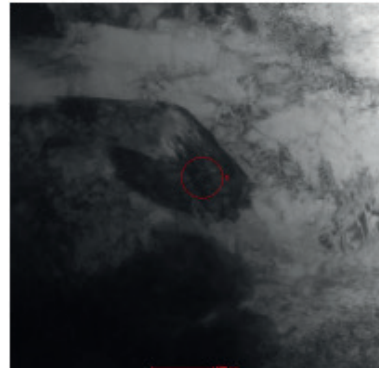


г) расшифрованная электронограмма

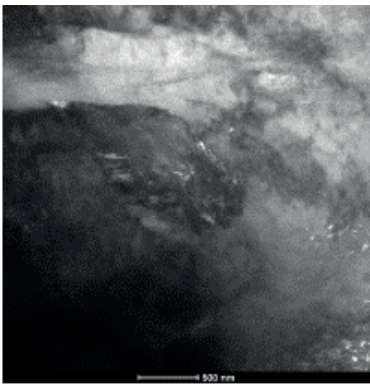
Рисунок 7.23. ПЭМ-изображения поверхности интерметаллидного сплава после отжига в течение 2 ч, при температуре $800\text{ }^\circ C$ с последующим охлаждением в печи до комнатной температуры (участок 1)



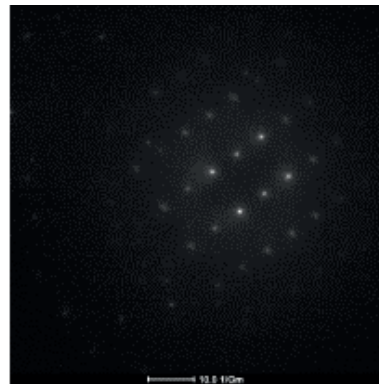
а) ПЭМ-изображения в светлом поле



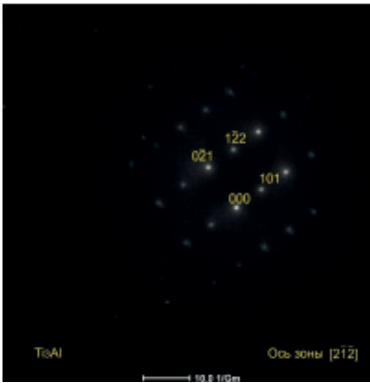
б) дифракция



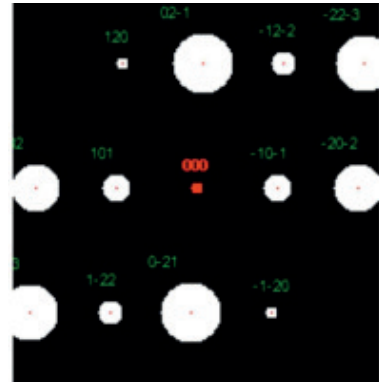
в) микрофотография в темном поле



г) электронограмма

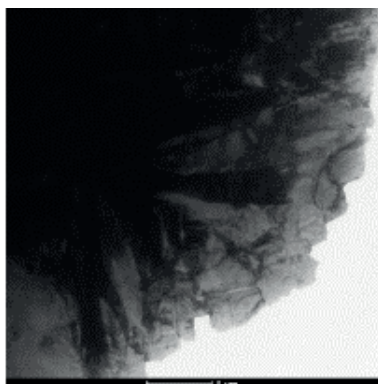


д) расшифрованная электронограмма



е) теоретическая электронограмма

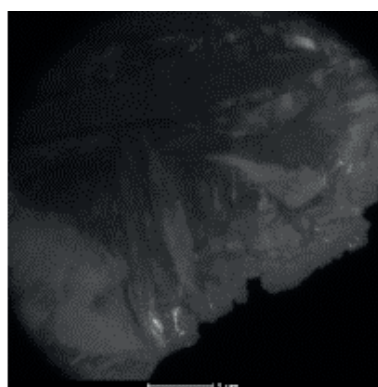
Рисунок 7.24. ПЭМ-изображения поверхности интерметаллидного сплава после отжига в течение 2 ч, при температуре 800 °С с последующим охлаждением в печи до комнатной температуры (участок 2)



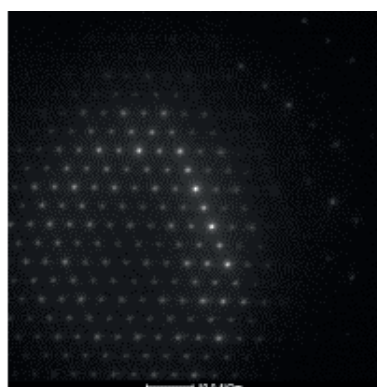
а) ПЭМ-изображения в светлом поле



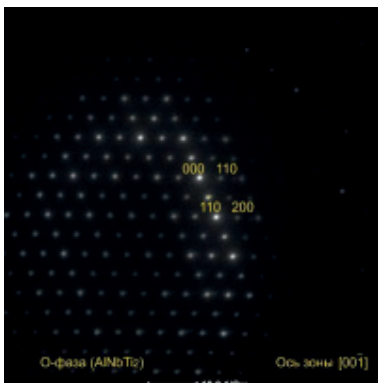
б) дифракция



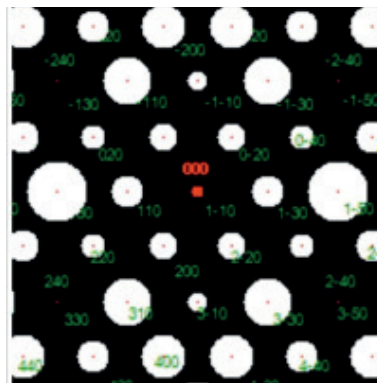
в) микрофотография в темном поле



г) электронограмма

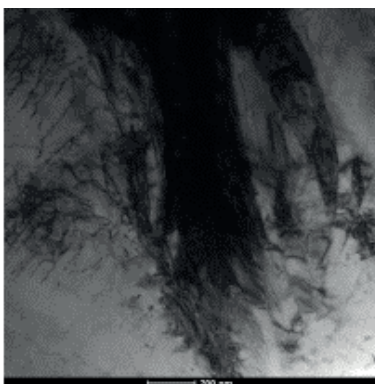


д) расшифрованная электронограмма

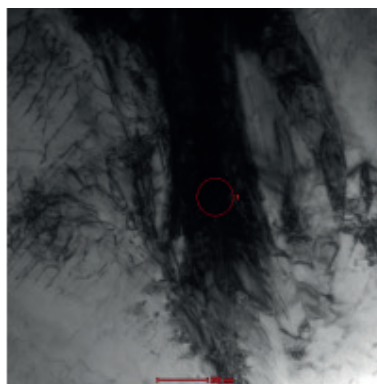


е) теоретическая электронограмма

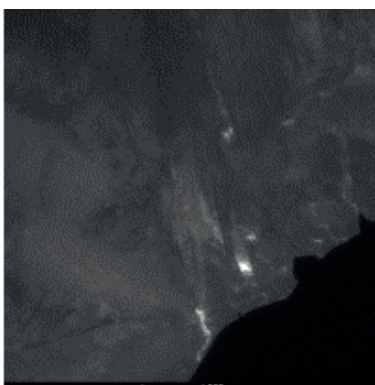
Рисунок 7.25. ПЭМ-изображения поверхности интерметаллидного сплава после отжига в течение 2 ч, при температуре 800 °С с последующим охлаждением в печи до комнатной температуры (участок 3)



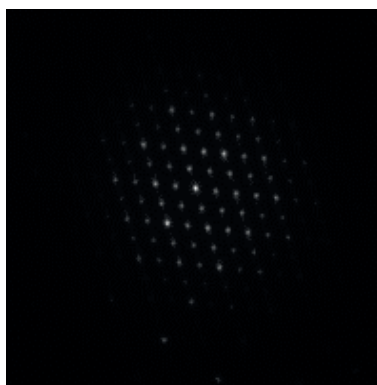
а) ПЭМ-изображения в светлом поле



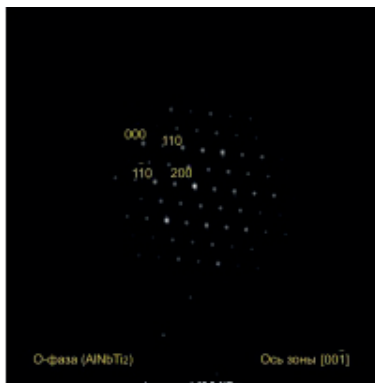
б) дифракция



в) микрофотография в темном поле



г) электроннограмма



д) расшифрованная электроннограмма

Рисунок 7.26. ПЭМ-изображения поверхности интерметаллидного сплава после отжига в течение 2 ч, при температуре 800 °С с последующим охлаждением в печи до комнатной температуры (участок 4)

Ti₂AlNb-фаза представляет собой соединение на основе титана, алюминия и ниобия с орторомбической решеткой (параметры: a = 6,0893 Å; b = 9,5694 Å; c = 4,6666 Å). Пространственная группа этой фазы – 63. На рисунке 7.27 показана элементарная ячейка соединения, позиции атомов приведены в таблице 7.10.

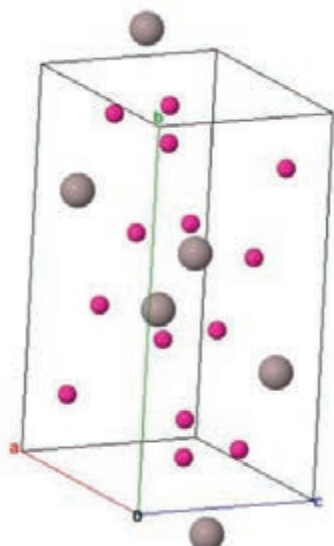


Рисунок 7.27. Пространственная ячейка Ti₂AlNb-фазы

Таблица 7.10. Позиции атомов в элементарной ячейке Ti₂AlNb -фазы

Позиция	Элемент	Симметрия	x	y	z	SOF	Координационное число
Nb, Ti1	0,823(4)Ti+ 0,117(4)Nb	m	0,231	0,4041	0,25	1	12
Nb, Ti2	0,646(8)Nb+ 0,354(8)Ti	m2m	0	0,1357	0,25	1	14
Al	Al	m2m	0	0,6633	0,25	1	12

Другой структурной составляющей сплава является Ti₃Al-фаза – соединение титана и алюминия, кристаллическая решетка которого основывается на решетке α-Ti с атомами алюминия, упорядоченно расположенными в гексагональной ячейке (пространственная группа – 194) параметры ячейки: a = 5,743 Å; b = 5,743 Å; c = 4,984 Å; α = 90; β = 90; γ = 120.

На рисунке 7.28 (см. стр. 270) показана элементарная ячейка этого соединения, позиции атомов приведены в таблице 7.11 (см. стр. 270).

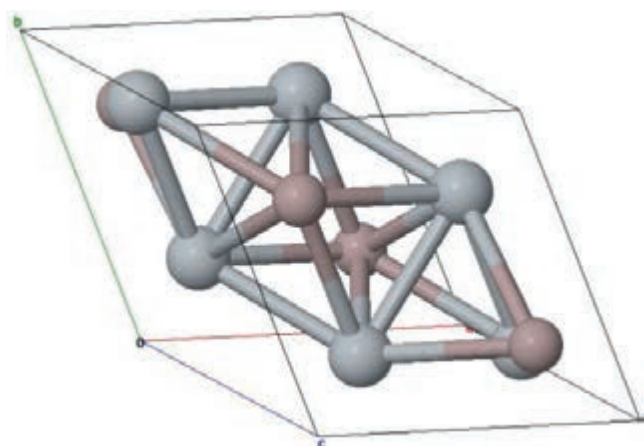
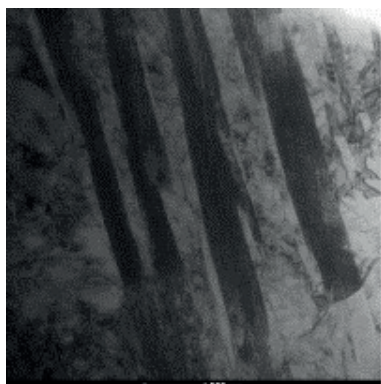


Рисунок 7.28. Пространственная ячейка α_2 -фазы

Таблица 7.11. Положения атомов в элементарной ячейке α_2 -фазы

Позиция	Элемент	Число Вькова	Симметрия	x	y	z	SOF
Ti1	Ti	6h	mm2	0,16667	0,33333	0.25	1
Al1	Al	2d	-6m2	0,33333	0,66666	0.75	1

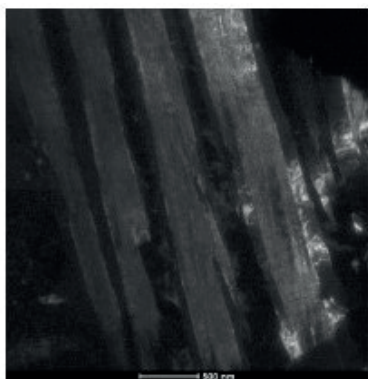
Результаты отжига в течение 2 ч при температуре 800 °С с последующим охлаждением в печи до комнатной температуры показали, что в образце присутствует как пластинчатая структура, так и структура, которую условно можно назвать полиэдрической (рисунки 7.29 и 7.30 на стр. 271 - 272). Средняя ширина пластин составляет 250 – 500 нм. Длина пластин не менее чем в 10 раз превышает ширину. Пластины в основном соответствуют Ti_2AlNb -фазе. На микроэлектронограммах этих областей присутствуют рефлексы двойников Ti_2AlNb -фазы, плоскость двойникования $(110)_0$. В работе [31] также было обнаружено, что после выдержки сплава Ti-22 %Al-26,6 %Nb при температуре 700 °С сохраняется двухфазное состояние, которое соответствует микроструктуре с крупными пластинами Ti_2AlNb -фазы с характерной доменной структурой и зернами Ti_2AlNb -фазы. Кроме того, в структуре сплава обнаружены пластины с крупными двойниками. В структуре сплава после отжига при температуре 700 °С в течение 1 ч кроме широких пластин α_2 -фазы были обнаружены участки с характерной полидоменной структурой, типичной для орторомбической Ti_2AlNb -фазы. Тонкие двойники-домены имеют явно выраженную внутреннюю доменную структуру, особенно это хорошо видно на негативных изображениях, полученных в рефлексах Ti_2AlNb -фазы. Результаты анализа рефлексов Ti_2AlNb -фазы показали, что наблюдаемые плоскости двойникования совпадают с плоскостями: $(110)_0$, $(221)_0$ и $(001)_0$. Двойникование по плоскости $(130)_0$ не обнаружено.



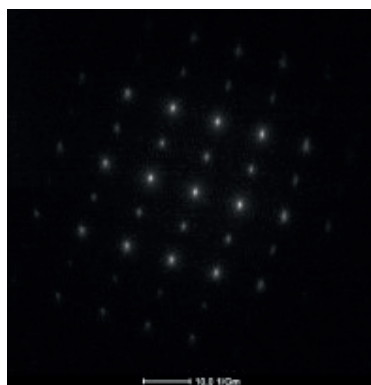
а) ПЭМ-изображения в светлом поле



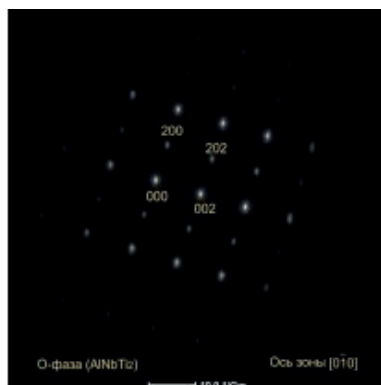
б) дифракция



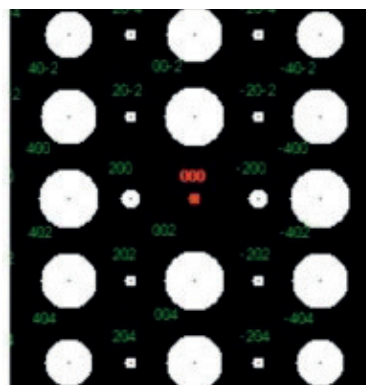
в) микрофотография в темном поле



г) электронограмма

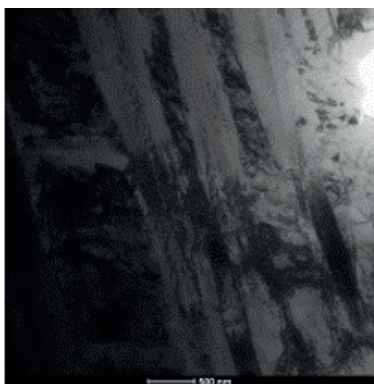


д) расшифрованная электронограмма

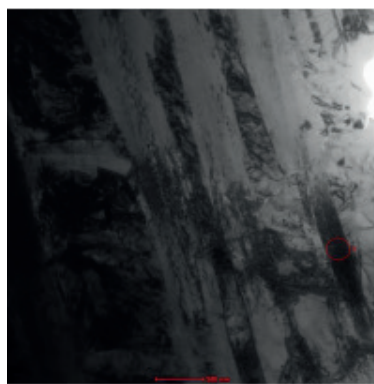


е) расчетная электронограмма

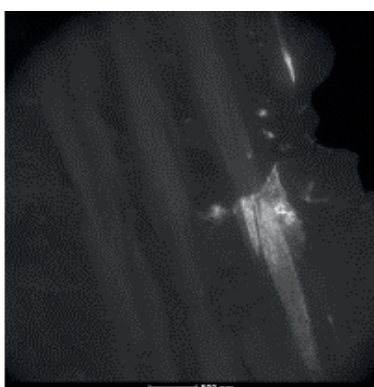
Рисунок 7.29. ПЭМ-изображения поверхности интерметаллидного сплава после отжига в течение 2 ч, при температуре 800 °С с последующим охлаждением в печи до комнатной температуры (участок 5)



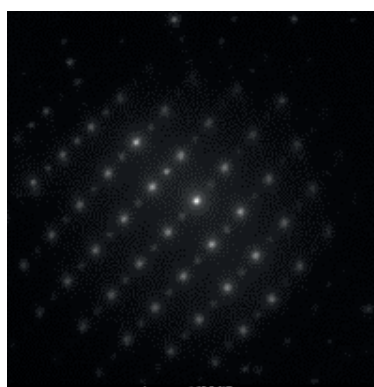
а) ПЭМ-изображения в светлом поле



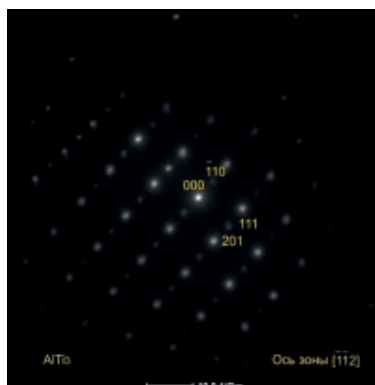
б) дифракция



в) микрофотография в темном поле



г) электронограмма



д) расшифрованная электронограмма

Рисунок 7.30. ПЭМ-изображения поверхности интерметаллидного сплава после отжига в течение 2 ч, при температуре 800 °С с последующим охлаждением в печи до комнатной температуры (участок 6)

По результатам ПЭМ-исследований сплава Ti-23,5 ат.%Al-21 ат.%Nb можно заключить, что в локальных участках материала имеются зоны, соответствующие соединению Ti_2AlNb , и зоны, соответствующие соединению Ti_3Al .

Заключение

По результатам научно-исследовательских работ, выполненных по настоящей теме, можно сделать следующие выводы:

- фазовый состав материалов смесей, прошедших механоактивацию при различных режимах, представлен фазами α -Ti, Nb (ОЦК решетка), твердого раствора водорода в ниобии (Nb, H) (ОЦК решетка). Установлено, что предварительная механоактивация в атмосфере аргона позволяет получать орторомбическую фазу Ti_2AlNb (O-фаза) при комнатной температуре, без повышенных требований к давлению, количественное содержание этой фазы в образцах после механоактивации на уровне 2 – 3 %;
- микротвердость ИМС на основе системы Ti-Al-Nb напрямую зависит от температурных режимов ИПС. С повышением температуры спекания с 800 °C до 1550 °C происходит увеличение микротвердости спеченных образцов, максимальное значение которого равно 7,3 ГПа;
- исследования микроструктуры образцов сплава на основе системы Ti-Al-Nb, спеченных при температуре 1000 °C и 1200 °C показали неоднородность структуры материала, состоящей из зерен Ti_3Al -фазы, Nb_2Al и дисперсных выделений Ti_2AlNb -фазы. Кроме того, в структуре были обнаружены непрореагировавшие частицы ниобия и титана. С увеличением температуры от 1300 °C до 1550 °C материал приобретает однородную lamellarную микроструктуру. По результатам карты распределения элементов обнаружено, что с увеличением температуры ИПС спекания до 1550 °C происходят активные процессы диффузии в системе Ti-Al-Nb, которые приводят к образованию более однородной микроструктуры по всему объему образцов;
- обнаружено, что в результате предварительного отжига при 800 °C в течение 2 ч спеченный сплав системы Ti-Al-Nb приобретает гомогенную структуру, состоящую, в основном, из орторомбической Ti_2AlNb -фазы, повышающей процесс абсорбции/десорбции водорода. При этом предположительно значительно увеличивается водородопоглощение материала.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ К ГЛАВЕ 7

1. Водородные технологии в литье и металлургии: настоящее и будущее (ОБЗОР) / М.В Гольцова // Литье и металлургия.– 4(93).– 2018.– С. 145-153.
2. Hydrogen: the future energy carrier / Züttel, A. Remhof, A. Borgschulte, O. Friedrichs // Phil Trans R Soc A.– 368 (2010).– P. 3329-3334.
3. Effect of Nb content on deformation behavior and shape memory properties of Ti-Nb alloys / H. Tobe, H.Y. Kim, T. Inamura, H. Hosoda, T.H. Nam, S. Miyazaki // J Alloy

- Comp.– 577 (1).– 2013.– P. S435-S438. Effect of Nb content on deformation behavior and shape memory properties of Ti-Nb alloys / H. Tobe, H.Y. Kim, T. Inamura, H. Hosoda, T.H. Nam, S. Miyazaki // *J Alloy Comp.*– 577 (1).– 2013.– P. S435-S438.
4. Influence of Nb and Mo on microstructure formation of rapidly solidified ternary Ti–Al-(Nb, Mo) alloys / C. Kenel, C. Leinenbach // *Intermetallics.*– Vol. 69.– 2016.– P. 82-89.
 5. Influence of Nb on the phase stability of Ti-Al-Nb / P.H. Mayrhofer, R. Rachbauer, D. Holec // *Scripta Materialia.*– Vol. 63.– Issue 8.– October 2010.– P. 807-810. Influence of Nb on the phase stability of Ti-Al-Nb / P.H. Mayrhofer, R. Rachbauer, D. Holec // *Scripta Materialia.*– Vol. 63.– Issue 8.– October 2010.– P. 807-810.
 6. ТУ 14-22-57-92. Порошок титановый. Технические условия.– Взамен ТУ 14-1-3086-80 ; введ. 1993-01-04.
 7. ГОСТ 26252-84. Порошок ниобиевый. Технические условия.– Введ. 1984-08-06.– М.: Издательство стандартов, 1990.– 34 с. ГОСТ 26252-84. Порошок ниобиевый. Технические условия.– Введ. 1984-08-06.– М.: Издательство стандартов, 1990.– 34 с.
 8. Omori, M. Sintering, consolidation, reaction and crystal growth by the spark plasma system (SPS) // *Materials Science and Engineering.*– 2000.– Vol. 287.– P. 183-188.
 9. Водородная энергетика и топливные элементы – взгляд в будущее: заключительный отчет экспертной группы Евросоюза.– 2003. (www.ioffe.rssi.ru/FuelCells/FC-final.pdf).
 10. ГОСТ 9450-76. Измерение микротвердости вдавливанием алмазных наконечников.– Введ. 1977-01-01.– М.: Изд-во стандартов, 1975.– 30 с.
 11. Золоторевский, В.С. Механические свойства металлов / В.С. Золоторевский.– М.: МИСИС, 1998.– 400 с.
 12. Приборы и методы физического металловедения / пер. с англ.; под ред. Ф. Вейнберга.– М.: Мир, 1973.– Вып. 1.– 427 с.
 13. Елютина, О.П. Практические вопросы испытания металлов / О.П. Елютина.– М.: Металлургия, 1979.– 280 с.
 14. Салтыков, С.А. Стереометрическая металлография / С.А. Салтыков.– М.: Металлургия, 1976.– 190 с.
 15. Эндрюс, К. Электронограммы и их интерпретация / К. Эндрюс, Д. Дайсон, С. Киоун.– М.: Мир, 1971.– 256 с.
 16. Практические методы в электронной микроскопии / под ред. О.М. Глоэра, пер. с англ.– Л.: Машиностроение, 1980.– 375 с.
 17. Хирш, П. Электронная микроскопия тонких кристаллов / П. Хирш [и др.]– М.: Мир, 1968.– 574 с.
 18. Исследование влияния температуры искроплазменного спекания микроструктуру сплава на основе Ti-Al-Nb / Б.К. Каракозов, А.А. Ситников, Ш.Р. Курбанбеков, М.К. Скаков, В.В. Бакланов, В.И. Яковлев // *Ползуновский вестник.*– 2016.– № 4.– Т.2.– С. 196-201.

19. Технология получения сплава Ti-Al-Nb методом искроплазменного спекания / Высокие технологии в современной науке и технике / Б.К. Каракозов, Е.А. Кожаметов, А.А. Ситников, Ш.Р. Курбанбеков // сб. трудов V Международной научно-технической конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 5–7 декабря 2016 г. – 2016. – С. 104-105.
20. Лякишева, Н.П. Диаграммы состояния двойных металлических систем / Н.П. Лякишева. – М.: Машиностроение, 1996. – 992 с.
21. Titanium Alloys / R. Boyer, G. Welsch, E.W. Collings // ASM International. – 1994. – 1176 p.
22. Исследование структурно-фазового состояния сплава Ti-23,5 ат.%Al-21 ат. %Nb, полученного методом искроплазменного спекания / Б.К. Каракозов, Ш.Р. Курбанбеков, А.А. Ситников, В.В. Бакланов, М.К. Скаков // сб. трудов 10-го Международного симпозиума «Инженерия поверхности. Новые порошковые композиционные материалы. Сварка», 5-7 апреля 2017 г. Минск, с. 462-469.
23. Использование алюминидов титана для создания электроискровых покрытий / С.А. Пячин, Т.Б. Ершова, А.А. Бурков, Н.М. Власова, В.С. Комарова // Известия вузов. Порошковая металлургия и функциональные покрытия. – 2015. – № 1. – С. 55–61.
24. Исследование эволюции порошковой интерметаллической системы титан алюминий при механическом легировании и консолидации / А.А. Сметкин // Вестник ПГТУ. Машиностроение, 2010. – Т.12. – № 2. – С. 22-30.
25. Получение перспективного материала на основе титана методом искроплазменного спекания / Ш.Р. Курбанбеков, М.К. Скаков, Б.К. Каракозов, В.В. Бакланов // 6-й Международный научный семинар «Перспективные технологии консолидации материалов с применением электромагнитных полей», 01-03 июня 2017 года, Пансионат РАН «Звенигородский» Московский обл. – С.53-54.
26. Колачев, Б.А. Гидридные системы / Б.А. Колачев [и др.]. – М.: Металлургия, 1992. – 350 с.
27. Наука, производство и применение титана в условиях конверсии / А.Г. Братухин, А.И. Хорев // I Международная конференция по титану стран СНГ. – Москва : ВИЛС, 1994. – Т. 1, 2. – 1062 с.
28. Борисова, Е.А. Титановые сплавы. Металлография титановых сплавов / Е.А. Борисова [и др.]. – М.: Металлургия, 1980. – 464 с.
29. Alloy and process development of TiAl / Wu Xinhua, D. Hu, M.H. Loretto // Journal of Materials Science. – 2004. – Vol.39. – P. 3935-3940.
30. Батаев, А.А. Композиционные материалы: строение, получение, применение / А.А. Батаев, В.А. Батаев. – М.: Логос, 2006. – 400 с.
31. Казанцева, Н.В. Материалы для высокоскоростных транспортных систем: монография / Н.В. Казанцева. – Екатеринбург: УрГУПС, 2016. – 163 с.

СОДЕРЖАНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	3
Г Л А В А 1	
Исследования процессов, происходящих при тяжелой аварии в активной зоне реактора на быстрых нейтронах	5
<i>Акаев А.С., Вурим А.Д., Мухамедов Н.Е., Пахниц А.В., Должиков С.А., Витюк Г.А., Иркимбеков Р.А., Котляр А.Н., Миллер А.А., Гайдайчук В.А., Цхе В.К., Сарсембаев Е.А., Светашов А.Н.</i>	
1.1 Вне реакторные эксперименты	6
1.2 Внутри реакторные эксперименты	33
Г Л А В А 2	
Исследование поведения твэлов быстрых реакторов в тяжелых авариях	63
<i>Вурим А.Д., Котов В.М., Пахниц А.В., Иркимбеков Р.А., Мухамедов Н.Е., Витюк Г.А., Сураев А.С., Сулейменов Н.А., Жанболатов О.М., Кожабаяев З.Б., Жунусова А.С., Котляр А.Н., Миллер А.А., Гайдайчук В.А., Цхе В.К.</i>	
2.1 Разработка технического проекта на экспериментальное устройство	64
2.2 Разработка программы экспериментов по исследованию характеристик твэла быстрого реактора	77
2.3 Принципы обеспечения безопасности в эксперименте	77
2.4 Нейтронно-физические и теплофизические параметры ЭУ при проведении эксперимента	79
2.5 Сборка ЭУ	91
2.6 Подготовка систем реактора и устройства к эксперименту	95
2.7 Проведение исследовательского пуска реактора с ЭУ	98
2.8 Обработка результатов реакторного эксперимента с нагружением твэла в потоке быстрых нейтронов	99
Г Л А В А 3	
Исследование процессов преобразования энергии ядерных реакций в энергию оптического излучения	103
<i>Самарханов К.К., Хасенов М.У., Гордиенко Ю.Н., Понкратов Ю.В., Тулубаев Е.Ю., Бочков В.С., Карамбаева И.С., Толмачев С.В., Служанов А.Н.</i>	
3.1 Способы и источники возбуждения газовых смесей продуктами ядерных реакций	105
3.2 Использование лития в качестве источника возбуждения газовых сред в активной зоне ядерного реактора	106
3.3 Экспериментальное оборудование, используемое в экспериментах	108
3.4 Методика проведения реакторных экспериментов	119

3.5 Результаты реакторных экспериментов	120
3.6 Анализ экспериментальных данных и систематизация полученных результатов работы	137

Г Л А В А 4

Исследования деградации структуры и свойств материалов штатных ОТВС реактора БН-350 в результате облучения и длительного изотермического воздействия	152
---	------------

Сапатаев Е.Е., Кожаметов Е.А., Коянбаев Е.Т.

4.1 Общая информация об объекте исследования	153
4.2 Состояние конструкционных материалов штатного ОТВС	154
4.3 Коррозионная повреждаемость конструкционных материалов ОТВС при кратковременных термическом и механо-термическом воздействиях	160
4.4 Изменение структуры и свойств конструкционных материалов ОТВС при длительном изотермическом воздействии	167

Г Л А В А 5

Изучение свойств прототипа кориума различных составов.....	184
---	------------

Кукушкин И.М., Бакланова Ю.Ю., Коянбаев Е.Т., Барбатенков Р.К., Мухамедова Н.М., Букина О.С., Семенова А.В.

5.1 Методика и методы исследований	185
5.2 Получение кориума разной степени окисленности.....	193
5.3 Плотность кориума	196
5.4 Структурно-фазовый состав кориума	197
5.5 Теплофизические свойства кориума	199

Г Л А В А 6

Исследования физико-химических свойств ядерного уран-графитового топлива	205
---	------------

Гордиенко Ю.Н., Бочков В.С., Кульсартов Т.В., Понкратов Ю.В., Тулубаев Е.Ю., Самарханов К.К., Карамбаева И.С., Служанов А.Н., Толмачев С.В.

6.1 Анализ литературных данных по исследованиям взаимодействия графитовых материалов с парами воды и кислородом при высокой температуре	208
6.2 Разработка и создание экспериментального комплекса для исследования процессов высокотемпературной коррозии реакторных материалов	211
6.3 Монтаж и ПНР экспериментального комплекса ТиГра	214
6.4 Определение оптимальных параметров экспериментального комплекса при проведении экспериментов по исследованию взаимодействия газов и парогазовых смесей с графитовыми материалами ЯР	215

6.5 Отработка методики экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива	223
6.6 Изготовление исследуемых образцов для проведения экспериментов по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива	229
6.7 Подготовка (калибровка) экспериментального комплекса ТиГра к экспериментам	232
6.8 Эксперименты по высокотемпературной коррозии ядерного уран-графитового топлива	235

Глава 7

Исследование перспективных материалов на основе системы Ti-Al-Nb для хранения и транспортировки водорода

248

Кожаметов Е.Н., Мухамедова Н.М., Ерыгина Л.А., Мухамеджанова Р. М.

7.1 Методика получения сплава на основе системы Ti-Al-Nb	249
7.2 Материаловедческие исследования сплава на основе системы Ti-Al-Nb	255

