ISSN 2414-5726

ФЕДЕРАЛЬНАЯ ЯДЕРНАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ
Федеральное государственное унитарное предприятие
«Научно-исследовательский технологический институт имени А.П. Александрова»

ТЕХНОЛОГИИ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ЖИЗНЕННОГО ЦИКЛА ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ СБОРНИК

№ 4 (26) 2021

Сосновый Бор

ISSN 2414-5726

ТЕХНОЛОГИИ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ЖИЗНЕННОГО ЦИКЛА ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

Периодический рецензируемый научно-технический сборник

№ 4 (26) 2021

Издается с 2015 года Сборник распространяется на территории Российской Федерации

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Главный редактор — В.А. Василенко, доктор технических наук, профессор, научный руководитель ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

ЧЛЕНЫ РЕДАКЦИОННОЙ КОЛЛЕГИИ

В.И. Альмяшев, кандидат химических наук, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

А.Я. Благовещенский, доктор технических наук, профессор, ВУНЦ-ВМФ «Военно-морская академия», Военно-морской политехнический институт, Санкт-Петербург.

В.И. Бурсук, доктор технических наук, директор центра сервиса АО «Концерн «НПО «Аврора», Санкт-Петербург.

В.С. Гурский, доктор технических наук, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

В.В. Гусаров, чл.-корр. РАН, доктор химических наук, Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург.

А.Л. Дмитриев, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

Ю.Э. Зевацкий, доктор химических наук, АО «Новбытхим», Санкт-Петербург.

А.В. Ельшин, доктор технических наук, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

С.С. Ермаков, доктор химических наук, профессор, Санкт-Петербургский государственный университет.

А.А. Ефимов, доктор технических наук, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

Ю.В. Крюков, (ответственный секретарь), кандидат технических наук, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

Ю.А. Мигров, доктор технических наук, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

Л.Н. Москвин, доктор химических наук, профессор, Санкт-Петербургский государственный университет.

Е.Б. Панкина, кандидат технических наук, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

С.А. Петров, доктор технических наук, НИИ кораблестроения и вооружения ВМФ, Санкт-Петербург.

О.Ю. Пыхтеев, кандидат химических наук, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

О.В. Родинков, доктор химических наук, профессор, Санкт-Петербургский государственный университет.

О.Б. Самойлов, доктор технических наук, АО «ОКБМ Африкантов», г. Нижний Новгород.

В.Л. Столярова, чл.-корр. РАН, доктор химических наук, Институт химии силикатов им. И.В. Гребенщикова РАН, Санкт-Петербург.

А.А. Сулацкий, (ответственный редактор), кандидат технических наук, ФГУП «НИТИ им. А. П. Александрова».

В.Б. Хабенский, доктор технических наук, профессор, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.

Учредитель: ФЕДЕРАЛЬНАЯ ЯДЕРНАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ Федеральное государственное унитарное предприятие «Научно-исследовательский технологический институт имени А.П. Александрова».

Издание зарегистрировано Федеральной службой по надзору в сфере связи и массовых коммуникаций
Свидетельство о регистрации СМИ: ПИ № ФС77–58865 от 28.07.14.
Адрес редакции: 188540 Россия, Ленинградская область, г. Сосновый Бор, Копорское шоссе 72, ФЯО ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова».

Телефон: 8 (813-69) 6-01-43 — отв. секретарь редколлегии.
Факс: 8 (813-69) 2-36-72. E-mail: foton@niti.ru; Интернет сайт: **www.niti.ru.**

Подписной индекс 43300 в объединенном каталоге «Пресса России».

Научно-технический сборник включен в Перечень рецензируемых научных изданий, в которых должны быть опубликованы основные научные результаты диссертаций на соискание ученой степени кандидата наук, на соискание ученой степени доктора наук по специальности 05.14.03 — Ядерные энергетические установки, включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации (технические науки).

При перепечатке ссылка на периодический рецензируемый научно-технический сборник **«Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок»** обязательна.

© ФЯО ФГУП «НИТИ им. А. П. Александрова», 2021

ISSN 2414-5726

FEDERAL NUCLEAR ORGANIZATION
Federal state unitary enterprise
“Alexandrov Research Institute of Technology”

NUCLEAR PROPULSION REACTOR PLANTS. LIFE CYCLE MANAGEMENT TECHNOLOGIES

COLLECTION OF PAPERS

№ 4 (26) 2021

Sosnovy Bor

ISSN 2414-5726

NUCLEAR PROPULSION REACTOR PLANTS. LIFE CYCLE MANAGEMENT TECHNOLOGIES

Collection of papers. Periodical edition

№ 4 (26) 2021

Published since 2015 The edition is distributed in the Russian Federation

EDITORIAL BOARD

Editor-in-Chief V. A. Vasilenko, Dr. Sc. (Engineering), Professor, Scientific Coordinator of Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

MEMBERS OF THE EDITORIAL BOARD

V.I. Almjashev, Cand. Sc. (Chemistry), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

A.Ya. Blagoveshchensky, Dr. Sc. (Engineering), Professor, Naval Polytechnic Institute of the Naval Academy (Military Educational and Research Center) in Saint Petersburg.

V.I. Bursuk, Dr. Sc. (Engineering), Director of the Service Center, JSC Concern Avrora SPA, Saint Petersburg.

V.S. Gursky, Dr. Sc. (Engineering), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

V.V. Gusarov, corresponding member of RAS, Dr. Sc. (Chemistry), the Ioffe Institute of RAS, Saint Petersburg.

A.L. Dmitriev, Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

A.A. Efimov, Dr. Sc. (Chemistry), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

A.V. Elshin, Dr. Sc. (Engineering), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

S.S. Ermakov, Dr. Sc. (Chemistry), Professor, Saint Petersburg State University.

V.B. Khabensky, Dr. Sc. (Engineering), Professor, Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

Yu.V. Kriukov, Assistant Editor, Cand. Sc. (Engineering), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

Yu.A. Migrov, Dr. Sc. (Engineering), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

L.N. Moskvin, Dr. Sc. (Chemistry), Professor, Saint Petersburg State University.

E.B. Pankina, Cand. Sc. (Engineering), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

S.A. Petrov, Dr. Sc. (Engineering), Research Institute of Navy Shipbuilding and Armaments, Saint Petersburg.

O.Yu. Pyhteyev, Cand. Sc. (Chemistry), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

O.V. Rodinkov, Dr. Sc. (Chemistry), Professor, Saint Petersburg State University.

O.B. Samoilov, Dr. Sc. (Engineering), JSC Afrikantov OKBM, Nizhny Novgorod.

V.L. Stolyarova, corresponding member of RAS, Dr. Sc. (Chemistry), Grebenshchikov Silicate Chemistry Institute of RAS, Saint Petersburg

A.A. Sulatsky, Executive Editor, Cand. Sc. (Engineering), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.

Yu.E. Zevatsky Dr. Sc. (Chemistry), NOVBYTCHIM Company, Saint Petersburg

FOUNDER:

Federal nuclear organization. Federal state unitary enterprise “Alexandrov Research Institute of Technology”.

PUBLICATION IS REGISTERED:

Federal service of supervision for communications. Registration certificate ПИ No. ФС77–58865, 28.07.14.

EDITORIAL OFFICE ADDRESS:

FNO FSUE “Alexandrov NITI”, 72 Koporskoye shosse, Sosnovy Bor, Leningrad region, 188540 Russia

Tel.: 8 (813 69) 6 01 43 — Assistant Editor.

Fax: 8 (813 69) 2 36 72. E-mail: foton@niti.ru; Website: **www.niti.ru.**

Subscription number in the “Russian Press” aggregate catalogue is 43300.

This Collection of Papers is included in the List of peer-reviewed scientific editions accredited for publishing results of doctoral and candidate degree thesis studies in discipline 05.14.03 — Nuclear power installations: design, operation, and decommissioning (engineering sciences).

Copyright notice: Reproduction of this edition in whole or in part shall always include the words “Reprinted from Collection of Papers “Nuclear propulsion reactor plants. Life cycle management technologies”.

© FNO FSUE “Alexandrov NITI”, 2021

Содержание

Выпуск № 4 (26) 2021

Предисловие главного редактора 7

Информационные сообщения

Жизнь, посвященная успешному развитию атомной энергетики, – поздравление редакционной коллегии Заслуженному деятелю науки Российской Федерации, доктору химических наук, профессору Л.Н. Москвину с 85-летием со дня рождения 9

Моделирование и исследование нейтронно-физических и теплогидравлических процессов объектов с ЯЭУ

Г.В. Аркадов, В.И. Павелко, В.П. Поваров, М.Т. Слепов

Обнаружение эффектов кавитации в главных циркуляционных контурах реакторной установки ВВЭР-1200 по сигналам датчиков пульсации давления 16

Химические технологии обеспечения жизненного цикла ЯЭУ, радиохимические и материаловедческие исследования

Д.О. Кирсанов, А.В. Легин, В.А. Бабаин

Оптическая спектрометрия и мультисенсорная потенциометрия с хемометрической обработкой данных для онлайн мониторинга в атомной промышленности 25

Технологии создания систем контроля и управления ЯЭУ

В.А. Василенко, А.М. Панкин, И.А. Тутнов

Разработка алгоритмов диагностирования технических объектов различного назначения 38

Исследование процессов при тяжёлых авариях на объектах атомной энергетики

В.Б. Хабенский, В.И. Альмяшев, А.В. Тимчук, Е.Б. Шуваева, Е.В. Крушинов, С.А. Витоль, А.А. Сулацкий, С.Ю. Котова, В.В. Гусаров

Экспериментальное определение точки пространственной инверсии сосуществующих фаз расплава в системе U-Zr-Fe-O-B_4C 53

В.Б. Хабенский, В.С. Грановский, В.А. Василенко, В.И. Альмяшев, Е.В. Крушинов, С.А. Витоль, А.А. Сулацкий, В.В. Гусаров

Определение теплопроводности корки, формирующейся на расплаве кориума при тяжёлой аварии на АЭС 67

Информация для авторов

Правила подачи материалов в редакцию 83

Contents

Issue № 4 (26) 2021

Chief editor's foreword 7

Information messages

Life devoted to successful development of atomic power industry – congratulations from the Editorial Board on the 85th birthday of Professor Leonid Moskvin, the Honored Scientist of the Russian Federation, Doctor of Science in Chemistry 9

Modeling and research of neutron and thermal-physical processes in propulsion reactor plants

G.V. Arkadov, V.I. Pavelko, V.P. Povarov, M.T. Slepov

Detection of cavitation effects in VVER-1200 reactor coolant system from signals of pressure fluctuation sensors 16

Use of chemical technologies in propulsion reactor plant life cycle management, radiochemical and material research

D.O. Kirsanov, A.V. Legin, V.A. Babain

Optical spectrometry and multisensor potentiometry with chemometric processing of data for on-line monitoring in nuclear industry 25

Development of monitoring and control systems for propulsion reactor plants

V.A. Vasilenko, A.M. Pankin, I.A. Tutnov

Development of diagnosis algorithms for technical objects of different purpose 38

Research of accidents in nuclear

V.B. Khabensky, V.I. Almjashev, A.V. Timchuk, E.B. Shuvaeva, E.V. Krushinov, S.A. Vitol, A.A. Sulatsky, S.Yu. Kotova, V.V. Gusarov

Experimental determination of spatial inversion point of coexisting molten phases in the U-Zr-Fe-O-B_4C system 53

V.B. Khabensky, V.S. Granovsky, V.A. Vasilenko, V.I. Almjashev, E.V. Krushinov, S.A. Vitol, A.A. Sulatsky, V.V. Gusarov

Determination of the thermal conductivity of the crust formed on the corium melt during a severe accident at a nuclear power plant 67

Information for authors

Submission procedure 83

Предисловие главного редактора
Chief editor's foreword

В двадцать шестом выпуске периодического рецензируемого научно-технического сборника **«Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок»** продолжена публикация статей и материалов по актуальным направлениям тематики.

В рубрике **«Информационные сообщения»** коллектив ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» и редколлегия научно-технического сборника **«Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок»** поздравляют члена редакционной коллегии Заслуженного деятеля науки Российской Федерации, доктора химических наук, профессора **Л.Н. Москвина** с юбилеем – 85-летием со дня рождения и публикуют биографический очерк «Жизнь, посвященная успешному развитию атомной энергетики» о жизни и научной деятельности юбиляра.

В рубрике **«Моделирование и исследование нейтронно-физических и теплогидравлических процессов объектов с ЯЭУ»** публикуется статья «Обнаружение эффектов кавитации в главных циркуляционных контурах реакторной установки ВВЭР-1200 по сигналам датчиков пульсации давления» с результатами анализа причин и условий возникновения кавитационных явлений в главных циркуляционных контурах реакторной установки ВВЭР-1200. Представленные в статье результаты актуальны для разработчиков оборудования АЭС в части дополнительного анализа возможности работы оборудования в кавитационных режимах, а также для разработчиков программ проведения пуско-наладочных измерений в части планирования дополнительных измерений для выявления кавитационных явлений в главных циркуляционных контурах реакторной установки ВВЭР-1200.

В рубрике **«Химические технологии обеспечения жизненного цикла ЯЭУ, радиохимические и материаловедческие исследования»** публикуется обзорная статья «Оптическая спектрометрия и мультисенсорная потенциометрия с хемометрической обработкой данных для онлайн мониторинга в атомной промышленности». Ссылаясь на актуальные литературные источники авторы отмечают, что применение современных хемометрических методов обработки аналитических сигналов позволяет получать достоверные данные о содержании контролируемых компонентов (актинидов, лантанидов, азотной кислоты) в технологических растворах, что существенно расширяет возможности аналитического контроля и мониторинга технологических процессов в ядерных технологиях.

В рубрике **«Технологии создания систем контроля и управления ЯЭУ»** публикуется статья «Разработка алгоритмов диагностирования технических объектов различного назначения», посвященная рассмотрению основных этапов разработки алгоритмов диагностирования сложных технических объектов, для которых предполагается создание систем диагностирования нового поколения. Авторы отмечают, что для современных объектов атомной энергетики, включающих ядерные энергетические установки различного назначения, использование методологии разработки алгоритмов диагностирования, представленной в статье, позволяет реализовать концепцию концерна «Росэнергоатом» «о переходе с технического обслуживания и ремонта по регламенту на техническое обслуживание и ремонт по техническому состоянию».

В рубрике **«Исследование процессов при тяжёлых авариях на объектах атомной энергетики»** публикуются статьи «Экспериментальное определение точки пространственной инверсии сосуществующих фаз расплава в системе U-Zr-Fe-O-B_4C» и «Определение теплопроводности корки, формирующейся на расплаве кориума при тяжелой аварии на АЭС» с результатами исследования стадии тяжелой аварии, связанной с формированием ванны расплава и изменением пространственного расположения двух несмешивающихся жидких фаз (металлической и оксидной) в базовой для тяжелой аварии на АЭС системе U-Zr-Fe-O-B_4C и описанием нового метода определения теплопроводности оксидной корки, формирующейся на ванне расплава оксидно-металлического кориума, прототипного тяжелой аварии на АЭС с ВВЭР. Приводимые в статьях результаты актуальны для расширения и уточнения баз данных, используемых для термодинамического моделирования фазовых равновесий в многокомпонентных системах расплава кориума на различных стадиях тяжелой аварии на АЭС с водо-водяными реакторами и уточнения данных по теплопроводности, используемых для анализа различных сценариев внутрикорпусной стадии тяжелой аварии на АЭС с водо-водяными реакторами.

В рубрике **«Информация для авторов»** приведены ссылки на Правила подготовки и подачи материалов в редакцию для публикации в научно-техническом сборнике «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок».

Главный редактор научно-технического сборника
«Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок»,
научный руководитель ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова»,

д.т.н., профессор В. А. Василенко
chief editor V. A. Vasilenko

Поздравление редакционной коллегии Заслуженному деятелю науки Российской Федерации, доктору химических наук, профессору Л.Н. Москвину с 85-летием со дня рождения

12 декабря 2021 года исполнилось 85 лет члену редакционной коллегии научно-технического сборника «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок», известному учёному, признанному специалисту в области создания химических технологий жизнеобеспечения ядерных энергетических установок, Заслуженному деятелю науки Российской Федерации, доктору химических наук, профессору Леониду Николаевичу Москвину.

Москвин Леонид Николаевич

Life devoted to successful development of atomic power industry

December 12, 2021 was the 85th birthday of Professor Leonid Moskvin, a member of the editorial board of Collection of Papers "Nuclear Propulsion Plants. Life Cycle Management Technologies", renowned researcher, acknowledged expert in the development of chemical technologies for nuclear propulsion plants, the Honored Scientist of the Russian Federation, Doctor of Science in Chemistry.

От имени редакционной коллегии научно-технического сборника «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок» и всего коллектива ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» сердечно поздравляем Леонида Николаевича Москвина со славным юбилеем, желаем крепкого здоровья и новых творческих успехов!

Леонид Николаевич является крупнейшим отечественным специалистом в области химического и радиохимического контроля технологических процессов в ядерных энергетических установках, ведущим специалистом в области методологии разделения и концентрирования веществ, организатором и руководителем (в течение 23 лет) отдела химико-технологических исследований в Научно-исследовательском технологическом институте имени А.П. Александрова.

Леонид Николаевич Лауреат Премии Правительства Российской Федерации в области науки и техники и премии им. В.Г. Хлопина Российской академии наук, он награждён орденами «Знак Почета» (1979 г.), «Трудового Красного Знамени» (1990 г.), «Александра Невского» (2013 г.), нагрудным знаком Госкорпорации «Росатом» «Академик А.П. Александров» (2016 г.), отраслевым знаком почета «75 лет атомной отрасли» (2020 г.), ему присвоено звание Почётный профессор СПбГУ.

В настоящее время Леонид Николаевич успешно сочетает педагогическую деятельность в Санкт-Петербургском университете с научной деятельностью в ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» (г. Сосновый Бор). Именно с деятельностью этих организаций связаны основные научные и технические достижения Леонида Николаевича. Он – автор и соавтор шести монографий, среди которых: «Методы разделения и концентрирования в аналитической химии», «Химические проблемы атомной энергетики», учебник «Аналитическая химия». С его участием опубликовано более 900 научных трудов. Он является автором и соавтором более 80 изобретений, на которые выданы патенты. Только в НИТИ под научным руководством Л.Н. Москвина подготовлено и в дальнейшем успешно защищено 25 кандидатских и 5 докторских диссертаций.

Многогранна и общественная деятельность Леонида Николаевича, в разные годы он являлся:

- членом экспертного совета по неорганической химии Высшей Аттестационной Комиссии при Совете Министров СССР;
- Заместителем Председателя Межведомственного координационного совета по физико-химическим проблемам реакторных установок атомных станций;
- Председателем диссертационного совета Д 212.232.37 по аналитической химии при СПбГУ, членом диссертационных советов при «ВНИПИЭТ», «ИАЭ им. И.В. Курчатова», членом «Совета Главных Конструкторов судов экологического назначения» при НПО «Гранит», членом Научно-технического совета НИТИ и Учёного Совета ЛГУ (СПбГУ).

Леонид Николаевич по-прежнему полон творческих планов и идей, реализация которых способствует решению важнейших задач, стоящих перед современной наукой и атомной энергетикой, успешное развитие которой стало смыслом его жизни.

Жизнь, посвященная успешному развитию атомной энергетики

Атомная отрасль с момента своего зарождения и до настоящего времени по всему широкому спектру решаемых задач как оборонной, так и социально-экономической направленности была и остаётся важнейшим научно-техническим направлением современной науки и техники, в котором за отечественными учёными и специалистами надёжно закреплён приоритет в решении ряда важнейших научно-технических задач.

Одним из признанных специалистов Советской и Российской атомной науки, посвятивших свою жизнь эффективному и безопасному развитию атомной энергетики, является Заслуженный деятель науки Российской Федерации, доктор химических наук, профессор Леонид Николаевич Москвин.

Леонид Николаевич родился в 1936-м году в Ленинграде в семье советских интеллигентов. Ему не исполнилось ещё и 5-и лет, как началась война. Осенью 1941 года Лёня со старшим братом Борисом и матерью-учительницей был эвакуирован из блокадного Ленинграда в Поволжье. Отец в это время уже был на фронте, где пал смертью храбрых, защищая Родину. Перенести трудности жизни в эвакуации маленькому Леониду помогало общение с такими же, лишенными родного крова детьми, проживавшими в детском доме, руководителем которого (с учётом имеющегося педагогического опыта) была назначена мать Бориса и Леонида.

В 1945 году семья вернулась из эвакуации в Ленинград на родную Петроградскую сторону. Здесь Лёня, как и все дети, поступил учиться в школу. «Я не относился к числу прилежных и целеустремленных молодых людей, которые ещё в школе ясно представляют себе своё будущее… Меня тянуло ввысь и вдаль без какой-либо определенной цели» – так вспоминает свои школьные годы сам Леонид Николаевич.

В школе Лёня познакомился с одноклассником Серёжей Томиловым (Сергей Борисович Томилов, к.х.н., заведующий лабораторией физико-химических исследований в НИТИ в 70-е годы), с которым до сих пор сохраняет дружеские даже близкие отношения. Однажды ближайший родственник Сергея – на то время студент химического факультета ЛГУ – поделился с ними сведениями о таинственной и загадочной специальности – «радиохимия» (это был 1945 год). Это и определило их общий выбор и последующее поступление после окончания в 1954 году школы № 82 на кафедру радиохимии Ленинградского государственного Университета.

Существовавшие в то время вокруг специальности «радиохимия» элементы таинственности и романтизма, а также замечательные педагоги – заведующий кафедрой, профессор Мурин Андрей Николаевич и руководитель дипломной работы с.н.с. Преображенский Борис Константинович, стимулировали у студента Москвина интерес к учёбе и научному творчеству. А свободное от учёбы время было занято зимними лыжными походами по Карельскому перешейку, турпоходами по Карпатам и Закарпатью, участием в геологических поисковых экспедициях на Кольском полуострове, на Дальнем Востоке в районе притока Лены реки Олекма, а также летние «комсомольские стройки» в колхозах Ленинградской области. И, хотя романтики работ в поисковых экспедициях хватило на всю оставшуюся жизнь (в одной из них Лёня Москвин чудом выбрался из тайги к «людям»), Леонид Николаевич никогда не жалел и не жалеет об «экспедиционных» поездках молодости.

В довоенные и послевоенные годы (и вплоть до середины 50-х) в СССР проводилось раздельное школьное обучение мальчиков и девочек. Поэтому в студенческой среде неформальное общение «по интересам» между студентами и студентками – вчерашними школьниками и школьницами было взаимоприятным и, часто, неожиданным откровением. Так уж получилось, что именно на одной из очередных «комсомольских строек» близ станции Громова (колхоз «Заветы Ильича») в неформальной обстановке состоялось знакомство Леонида и Светы (однокурсницы Светланы Александровны Симановой), которое переросло во влюблённость, за которой на 5-м курсе обучения в университете последовала свадьба и дальнейшая счастливая семейная жизнь в течение более 50 лет. Светлана Александровна – мать сына Алексея, доктор химических наук, профессор, заведовала кафедрой неорганической химии в СПбТИ (ТУ). К сожалению, Светлана Александровна Симанова в 2012 году ушла из жизни и похоронена на Серафимовском кладбище в Санкт-Петербурге.

Интерес к научному творчеству у Леонида Николаевича проявился на 4-м курсе ЛГУ благодаря уже упоминавшемуся руководителю дипломной работы Борису Константиновичу Преображенскому, который в своих отношениях с дипломником полностью исключал мелочную опеку в поисках решения поставленной задачи, развивая в молодом человеке способности рас-

считывать на собственные силы в научной деятельности. Дипломная работа Л.Н. Москвина, посвящённая разработке методики ионообменно-хроматографического разделения элементов 5-й аналитической группы (мышьяк, сурьма, олово, германий, платина, иридий), фактически и определила сферу будущих научных интересов молодого учёного, которые, в основном, и сосредоточились в области разработки методов разделения веществ.

После окончания в 1959 году университета из трёх предложенных мест дальнейшей работы Леонид Николаевич выбрал «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина» Академии наук СССР, в котором проработал в лаборатории, возглавляемой известным физиком-ядерщиком, членом-корреспондентом академии наук Борисом Сергеевичем Джелеповым, в течение 10 лет. Здесь в 1966 году Леонид Николаевич защитил кандидатскую диссертацию по специальности «Радиохимия», посвящённую разработке новых хроматографических методов разделения радионуклидов. После защиты диссертации Леонид Николаевич получил реальную возможность реализации своей научной идеи – непрерывной двухмерной хроматографии. Здесь, в радиевом институте, под научным руководством Л.Н. Москвина первыми его учениками Л.Г. Царицыной и А.В. Мозжухиной были осуществлены процессы непрерывной двухмерной экстракционной и ионообменной хроматографии. Здесь же и в это же время у Леонида Николаевича возникла идея создания жидких экстракционных мембран, импрегнированных на пористом инертном носителе, для непрерывного диализного и электродиализного разделения веществ.

Работы по реализации этой идеи были начаты в РИАНе еще с одним учеником Леонида Николаевича – Ю.Л. Черешкевичем – на примере электродиализного выделения платиновых металлов через трибутилфосфатную мембрану. Дальнейшее развитие перечисленных направлений было продолжено многочисленными учениками Леонида Николаевича в Университете, Технологическом институте им. Ленсовета и в Научно-исследовательском технологическом институте (г. Сосновый Бор), куда Л.Н. Москвин перешел на работу в 1969 году.

Научно-исследовательский технологический институт (основанный 17.07.1962) как Государственная испытательная станция – филиал Института Атомной Энергии им. И.В. Курчатова – для ресурсных испытаний полномасштабных стендов-прототипов ядерных энергетических установок (ЯЭУ) транспортного назначения, в проекте структуры которого была предусмотрена радиохимическая лаборатория, являлся привлекательным для радиохимика местом работы. Сотрудник НИТИ, выпускник кафедры радиохимии ЛГУ Н.Н. Калинин (из чувства солидарности и профессиональной поддержки) сообщил Леониду Николаевичу о возможности стать претендентом на должность заведующего радиохимической лаборатории в НИТИ и организовать её функционирование. Леонид Николаевич «загорелся» идеей перехода во вновь созданный институт.

Руководитель Л.Н. Москвина в радиевом институте Б.С. Джелепов с пониманием отнёсся к решению молодого «остепенённого» учёного перейти на работу в НИТИ и даже написал рекомендательное письмо в Курчатовский институт известному учёному-радиохимику Борису Васильевичу Курчатову, которое, в конечном итоге способствовало появлению приказа директора НИТИ А.Н. Проценко: «кандидата химических наук тов. Москвина Леонида Николаевича, прибывшего по переводу из Радиевого института им. В.Г. Хлопина, назначить с 9 июня 1969 года и.о. старшего научного сотрудника радиохимической лаборатории, … возложив на него обязанности начальника той же лаборатории»… Директор НИТИ – А.Н. Проценко».

Годы работы в НИТИ были чрезвычайно плодотворными для Леонида Николаевича. Л.Н. Москвин в течение 23 лет возглавлял лабораторию радиохимии, из которой был создан сначала сектор, а затем отдел химико-технологических и материаловедческих исследований, существующий в НИТИ по настоящее время как отдел химико-технологических исследований (ОХТИ) и отметивший в 2019 году своё 50-летие со дня основания.

В это время директором Курчатовского института (а, следовательно, и руководителем, курирующим деятельность НИТИ) был академик Анатолий Петрович Александров, который уделял большое личное внимание не только развитию института, но и оказывал персональную поддержку молодым учёным – руководителям научных подразделений в институте. В частности, Анатолий Петрович активно поддержал предложение молодого руководителя лаборатории радиохимии Л.Н. Москвина о совмещении прикладных научных исследований по тематике НИТИ с инициативными поисковыми исследованиями в смежных областях и оказал активную помощь в публикации результатов работ, начатых Л.Н. Москвиным ещё в РИАНе. Более того, Анатолий Петрович и сам обозначал актуальные научные проблемы и задачи, выходящие за рамки основной тематики деятельности института. В частности, от него последовало предложение Леониду Николаевичу принять участие в решении проблемы разделения изотопов водорода и лития, что в конечном итоге привело к созданию в НИТИ нового электромембранного метода обогащения трития и нового противоточного электрофоретического метода обогащения изотопов лития. В решении «литиевой» проблемы существенную поддержку оказал академик Кикоин Исаак Константинович, с которым Леонид Николаевич неоднократно общался и советовался по этой тематике, как с авторитетным специалистом в области разделения изотопов, представителем школы академика А.Ф. Иоффе.

Из инициативных работ того времени необходимо отметить развитие аналитического направления метода непрерывной двумерной хроматографии, проявившегося в создании на основе этого метода непрерывных методов газового анализа и непрерывного радиохимического метода анализа радионуклидного состава продуктов деления топлива в водных теплоносителях ядерных энергетических установок. Как специалиста-радиохимика эти направления работ крайне заинтересовали будущего академика Валерия Алексеевича Легасова, а на время знакомства с Леонидом Николаевичем, секретаря парткома ИАЭ им. И.В. Курчатова, во время его приезда в НИТИ с целью знакомства с НИТИ – филиалом ИАЭ им. И.В. Курчатова. Результатом знакомства с работами возглавляемой Л.Н. Москвиным лаборатории являлось признание их научной значимости и, как следствие, сделанное руководителю приглашение войти в состав Совета по защите кандидатских диссертаций по специальности «радиохимия» при ИАЭ им. И.В. Курчатова.

Важнейшую роль в становлении Л.Н. Москвина, как руководителя, сыграл ученик А.П. Александрова Евгений Петрович Рязанцев – директор НИТИ с 1973 по 1979 год, доктор технических наук, Лауреат Ленинской премии.

Рязанцев Евгений Петрович

Именно ему принадлежала идея объединения существовавших в институте лабораторий химического профиля и служб химико-технологического контроля стендовых ЯЭУ с лабораториями радиохимии и материаловедения, с целью создания единого направления химико-технологических и материаловедческих исследований (ОХТМИ) под общим руководством Леонида Николаевича Москвина. Кандидатура Л.Н. Москвина получила большую поддержку со стороны Эрика Сергеевича Брянских – бессменного главного инженера НИТИ с 1966 по 1991 год, Лауреата Государственной Премии СССР, с которым у Леонида Николаевича по жизни сложились добрые, доверительные деловые и человеческие отношения.

Проведённая реорганизация стимулировала, с одной стороны, появление новых направлений научных исследований, а с другой – заставила Л.Н. Москвина задуматься о защите докторской диссертации. Что касается защиты диссертации, то Леонид Николаевич защитил докторскую диссертацию в 1976 году по специальности «радиохимия» в совете, созданном В.А. Легасовым в ИАЭ им. И.В. Курчатова.

Что касается появления новых направлений научных исследований, то в ОХТМИ под научным руководством Леонида Николаевича появились такие научные направления как:

- разработка метода реакторного контроля радионуклидов в газоаэрозольных сбросах и выбросах на АЭС;
- методы и методики радиоаналитического определения радионуклидов в технологических средах и в объектах окружающей среды;
- разработка и совершенствование водно-химических режимов ЯЭУ;
- разработка и совершенствование малоотходных технологий дезактивации первых контуров ЯЭУ;
- совершенствование радиометрических методов контроля герметичности тепловыделяющих элементов;
- разработка и совершенствование ионселективных методов определения микроконцентраций хлоридов;
- разработка электромембранных методов разделения изотопов лития и водорода;
- разработка новой методологии жидкостно-газовой хроматографии;
- разработка методологии обнаружения взрывчатых веществ на принципах спектроскопии ионной подвижности, исследования взаимовлияния типа водно-химического режима ЯЭУ на радиационную и коррозионную обстановку в контурах атомных станций;
- развитие методов и средств радиометрического контроля технологических сред ЯЭУ и объектов окружающей среды.

Радиоэкологическое направление в отделе Л.Н. Москвина возникло после присоединения к отделу лаборатории контроля окружающей среды (лаборатории внешней дозиметрии), организованной в НИТИ и возглавляемой в своё время руководителем одной из Антарктических (Советских) станций Н.Н. Ереминым, которая не только проводила экологический мониторинг, но и вела самостоятельную исследовательскую работу, в том числе и по воздействию ЯЭУ на окружающую среду. После увольнения Н.Н. Еремина в связи с назначением его начальником дрейфующей станции «СП-19» лабораторию возглавлял И.И. Крышев – молодой ученый, кандидат физико-математических наук, в дальнейшем профессор и доктор физико-математических наук.

Первыми сотрудниками структурированной лаборатории радиохимии, руководимой Л.Н. Москвиным, были Н.Н. Калинин, М.Ф. Гумеров, В.А. Мельников, Е.И. Леонтьева,

С.Б. Омельянова, Р.Г. Фокина, В.И. Тофтул, В.А. Кочеванов, В.С. Мирошников, С.Б. Томилов, Г.К. Слуцкий. В 1970 году в лабораторию были приняты Г.Г. Леонтьев, И.С. Орленков, А.А. Ефимов, В.М. Красноперов. Из химической службы стенда КВ-1 в лабораторию радиохимии перешли Б.А. Гусев, Н.Я. Вилков, О.М. Адамов.

В лаборатории материаловедения под руководством Я.И. Шермана трудились на момент создания структуры отдела Ю.Б. Бурба, Л.С. Аксенова, Э.И. Ли, Е.Н. Полякова, В.А. Петрущенков, Р.В. Мамичева, Т.И. Федорова, З.Н. Вилкова, И.Н. Орленкова, Т.Л. Елисеева, С.В. Ковтунова, С.И. Хабенская, Е.В. Семенова, Г.В. Лекарев.

Кроме перечисленных лабораторий в состав руководимого Л.Н. Москвиным сектора, а чуть позже – отдела вошли также руководители химических служб стендов КМ-1 и КВ-1 В.Д. Головин и В.Я. Бредихин.

В руководимом Л.Н. Москвиным отделе и под его непосредственным научным руководством сотрудниками отдела были подготовлены и успешно защищены кандидатские диссертации по радиохимии, аналитической и неорганической химии, другим техническим наукам, соответствующим направлениям работы НИТИ: М.Ф. Гумеров (1974 г.), Н.Н. Калинин (1975 г.), В.А. Мельников (1975 г.), В.М. Красноперов (1975 г.), А.А. Ефимов (1980 г.), А.И. Горшков (1983 г.), Н.Я. Вилков (1983 г.), Г.Г. Леонтьев (1983 г.), Е.В. Сосновская (1986 г.), В.Н. Епимахов (1986 г.), Л.Л. Чилипенко (1986 г.), В.С. Гурский (1986 г.), Г.Л. Григорьев (1987 г.), В.Я. Бредихин (1988 г.), А.Н. Катрузов (1988 г.), А.Г. Шматко (1988 г.), А.К. Андрианов (1989 г.), В.В. Четвериков (1989 г.), В.В. Кривобоков (1990 г.), Л.А. Годон (1990 г.), О.В. Родинков (1992 г.).

Переход Л.Н. Москвина в Санкт-Петербургский университет в связи с его избранием в 1993 году заведующим кафедрой аналитической химии не ослабил его связи с ОХТМИ НИТИ, сотрудником которого по совместительству он оставался ещё долгое время. Его учениками были созданы все условия для продолжения в НИТИ незаконченных исследований и открытия в ОХТМИ новых направлений исследований и разработок. К настоящему времени в отделе к ранее «защищенным» кандидатам наук присоединились Л.В. Епимахова (1996 г.), Б.А. Гусев (1996 г.), О.Ю. Пыхтеев (1997 г.), Е.Б. Панкина (2004 г.), Ю.В. Крюков (2005 г.), В.Т. Мацаев (2006 г.), А.А. Змитродан (2011 г.), И.В. Мирошниченко (2017 г.), С.Н. Орлов (2020 г.).

В 1990 году в отделе появился второй после Л.Н. Москвина доктор наук – И.С. Орленков. Его кандидатская диссертация диссертационным советом при ВНИПИЭТ была рекомендована к повторной защите, как докторская. Следующими докторами наук стали: В.Н. Епимахов (2006 г.), В.С. Гурский (2013 г.), Б.А. Гусев (2014 г.), А.А. Ефимов (2018 г.).

С 2015 года Леонид Николаевич активно работает в редакционной коллегии рецензируемого периодического научно-технического сборника «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок», выпускаемого ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова». В свои 85-лет Л.Н. Москвин полон творческой энергии, новых замыслов и планов, которые надеется реализовать вместе со своими учениками.

Ученики, друзья и коллеги сердечно поздравляют учителя и соратника с 85-летием. Желаем Вам, Дорогой Леонид Николаевич, крепкого здоровья, долголетия и новых творческих успехов во славу отечественной науки и на благо нашей Родины!

Редакционная коллегия научно-технического сборника «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок», коллектив ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова»

УДК 621.039.4 DOI:10.52069/2414-5726_2021_4_26_16

Обнаружение эффектов кавитации в главных циркуляционных контурах реакторной установки ВВЭР-1200 по сигналам датчиков пульсации давления

Г.В. Аркадов[1], В.И. Павелко[1], В.П. Поваров[2], М.Т. Слепов[2]

[1]АО «Акционерное общество «Научно-технический центр «Диапром», Калужская область, г. Обнинск, Россия

[2]Филиал АО «Концерн Росэнергоатом» Нововоронежская АЭС, г. Нововоронеж Воронежской обл., Россия

Аннотация

В настоящее время реакторные установки ВВЭР-1200 оснащены системами технического диагностирования, позволяющими выявлять и идентифицировать кавитационные явления в главных циркуляционных контурах.

На основе анализа большого объёма экспериментального материала в статье рассматриваются условия возникновения кавитационных явлений в главных циркуляционных контурах реакторной установки ВВЭР-1200. Представленные в статье данные подтверждают наличие кавитационных явлений в циркуляционных петлях реакторных установок ВВЭР-1200.

Обсуждаются ограниченные возможности испытаний главных циркуляционных насосных агрегатов, проводимых на специализированных стендах, ввиду невозможности в полной мере воспроизвести как конфигурацию циркуляционной петли, так и характеристики процессов, протекающих в ней на АЭС.

Ключевые слова: ВВЭР-1200, главный циркуляционный контур, кавитация, датчик пульсации давления, акселерометр, резонанс, система технической диагностики, среднеквадратичное значение, автоспектральная плотность мощности, акустическая стоячая волна, система контроля.

Detection of cavitation effectsinVVER-1200 reactor coolant system from signals of pressure fluctuation sensors

G.V. Arkadov[1], V.I. Pavelko[1], V.P. Povarov[2], M.T. Slepov[2]

[1]JSC “Joint Stock Company “Scientific and Technical Center “Diaprom”, Kaluga region, Obninsk, Russia

[2]Branch of JSC “Concern Rosenergoatom” Novovoronezh NPP, Novovoronezh, Voronezh region, Russia

Abstract

The existing VVER 1200 reactors are equipped with diagnostic systems allowing for detection and identification of cavitation phenomena in the main coolant loops.

Based on analysis of large amounts of experimental data, the paper describes the conditions leading to cavitation in the VVER-1200 reactor coolant system. The data presented in the paper report the occurrence of cavitation phenomena in the VVER-1200 coolant loops.

The paper discusses the limitations of testing of reactor coolant pumps in special-purpose test facilities. These limitations are due to the inability of reproducing in full scale neither configuration of the coolant loop nor parameters of the processes occurring in this loop at real NPP.

Key words: VVER-1200, reactor coolant system, monitoring system, cavitation, pressure fluctuation sensor, accelerometer, resonance, diagnostic system, root-mean-square, autospectral power density, standing acoustic wave.

Введение

Кавитация – это образование в жидкости паровых полостей, возникающих в результате понижения местного давления [1]. Кавитационные пузыри, перемещаясь с потоком жидкости в область с более высоким давлением схлопываются, вызывая при этом ударную волну. Явление кавитации, всегда сопровождает работу главного циркуляционного насосного агрегата (ГЦНА) реакторной установки (РУ) ВВЭР-1200.

Причиной кавитации могут выступать не только турбулентные пульсации давления теплоносителя (ТН), но и наличие отрицательных полуволн различных типов акустических стоячих волн (АСВ), соответствующих периодическому снижению давления ТН в ГЦНА.

При работе ГЦНА кавитация может вызывать различные нежелательные эффекты, такие как:

- ухудшение характеристик насоса (напора, производительности и коэффициента полезного действия (КПД));
- питтинговую (вызывающую углубления в металле) коррозию и эрозию лопастей и дисков рабочего колеса, а также спирального отвода в месте схлопывания пузырьков;
- вибрацию конструкции ГЦНА (как следствие, влияние на ресурсные характеристики оборудования) и генерацию шума.

В этой связи процесс кавитации необходимо либо предотвращать уже на начальной стадии его возникновения в главных циркуляционных контурах реакторной установки, либо не обращать на него внимания в силу незначительного воздействия на основное оборудование, для чего необходимо зафиксировать появление кавитации в ГЦНА с количественной оценкой условий и последствий проявления кавитационных эффектов для ВВЭР-1200.

Исследование возникновения кавитации при работе ГЦНА осложняется следующим обстоятельством. При проведении программы испытаний работы ГЦНА на различных стендах невозможно полностью смоделировать циркуляционную петлю действующего энергоблока АЭС, что затрудняет выявление и оценку характеристик режимов работы ГЦНА, при которых возможны кавитационные явления.

Ввод энергоблоков АЭС в эксплуатацию предусматривает проведение различных испытаний ГЦНА, однако основной задачей при этом является подтверждение расчётных характеристик ГЦНА (напор, расход, КПД и т.д.) в предположении об отсутствии кавитационных явлений.

В статье обсуждается предложенная авторами гипотеза возникновения кавитации при работе ГЦНА вследствие воздействия на турбулизированный поток ТН отрицательных полуволн различных типов акустических стоячих волн (АСВ), соответствующих периодическому снижению давления теплоносителя [2, 3].

Негативные последствия кавитации хорошо известны и главные из них – износ поверхностей рабочего колеса главного циркуляционного насоса (ГНЦ) и образование ударных волн

давления, которые могут привести к гидравлическим ударам в контуре циркуляции. Уровень кавитации характеризуется как макроскопическими параметрами ТН – давление, температура, плотность, скорость, концентрация растворённых солей и газов, так и факторами, влияющими на пульсации давления ТН (АСВ, турбулентность) [4].

Очевидно, что в разных режимах функционирования РУ перечисленные выше факторы и параметры, влияющие на уровень кавитации, характеризуются большой изменчивостью. Однако при проектировании оборудования РУ расчётным путём определяются и устанавливаются значения технологических параметров, обеспечивающие незначительный, пренебрежимо малый уровень кавитации для любых проектных режимов работы. Например, температура ТН в петлях и давление в главном циркуляционном контуре (ГЦК) при любых штатных режимах работы РУ выбраны так, чтобы не исчерпывался (до нуля) запас до температуры кипения ТН при любых флуктуациях давления из-за наличия АСВ или турбулентных эффектов [2].

Схема размещения датчиков пульсации давления на теплообменной петле ГЦК реакторной установкиВВЭР-1200

Одной из особенностей, характеризующих ввод в эксплуатацию отечественных АЭС и зарубежных АЭС, сооружаемых по российским проектам, является проведение большого объёма измерений на различных стадиях пусконаладочных работ в отличие от зарубежного опыта, где специалисты больше внимания уделяют расчетному обоснованию, а при вводе в эксплуатацию натурные испытания оборудования проводятся в меньшем объёме.

При вводе в эксплуатацию отечественных энергоблоков АЭС, то есть при проведении пусконаладочных работ [5, 6], для подтверждения соответствия заложенных проектных решений реальным условиям эксплуатации оборудования энергоблока используются специализированные системы пуско-наладочных измерений (СПНИ).

Использование различных подсистем комплекса СПНИ при проведении пусконаладочных работ позволяет получить необходимое количество первичной информации о реальном состоянии оборудования (вибрация, температура, пульсации давления, напряжения и т.д.), которую затруднительно получить в условиях промышленной эксплуатации энергоблока АЭС. Одной из основных задач при проведении пусконаладочных измерений является получение максимально полной информации по особенностям гидродинамической нестабильности потока ТН в первом контуре РУ и, в частности, определение интенсивности и частотного спектра пульсаций давления ТН, их распределения по проточному тракту и выявление зон повышенных пульсаций давления [7, 8].

Факторы, присутствующие при работе ГЦНА, являются основным источником пульсаций давления ТН первого контура РУ. Пульсации давления, оставаясь основным источником вибрационной нагруженности внутрикорпусных устройств реактора, не доходят от ГЦНА до реактора в неизменном виде. Пульсации давления на входе в реактор являются функцией, зависящей от многих параметров, таких как:

- пульсации давления теплоносителя(ТН) первого контура, связанные с наличием акустических стоячих волн в первом контуре РУ на участке от ГЦНА до входа в реактор;
- пульсации давления ТН, вызываемые работой систем подпитки первого контура и других систем РУ [8], взаимодействующих с теплоносителем прямо, либо опосредованно.

Указанные выше обстоятельства требует проведения серии экспериментов для определения зависимостей между пульсациями давления и вибрационной нагрузкой на оборудование ГЦК, с использованием каналов пульсации давления, в качестве которых при пусконаладочных измерениях использовались полупроводниковые датчики давления (система контроля пульсаций давления и вибраций элементов оборудования РУ) [9].

На рис. 1 представлены развёртка теплообменной петли ГЦК ВВЭР-1200 (энергоблок № 1 Нововоронежской АЭС-2) с указанием реальных геометрических размеров и схема размещения датчиков пульсаций давления (ДПД) и акселерометров на ГЦКВВЭР-1200.

Следует отметить, что представленные на рис. 1 развёртки теплообменной петли ГЦК являются упрощенными. В частности, коллекторы парогенераторов (ПГ) изображены разнесёнными в пространстве на усреднённую длину теплообменных трубок 11.1 м, хотя реально они находятся в ПГ вблизи друг друга.

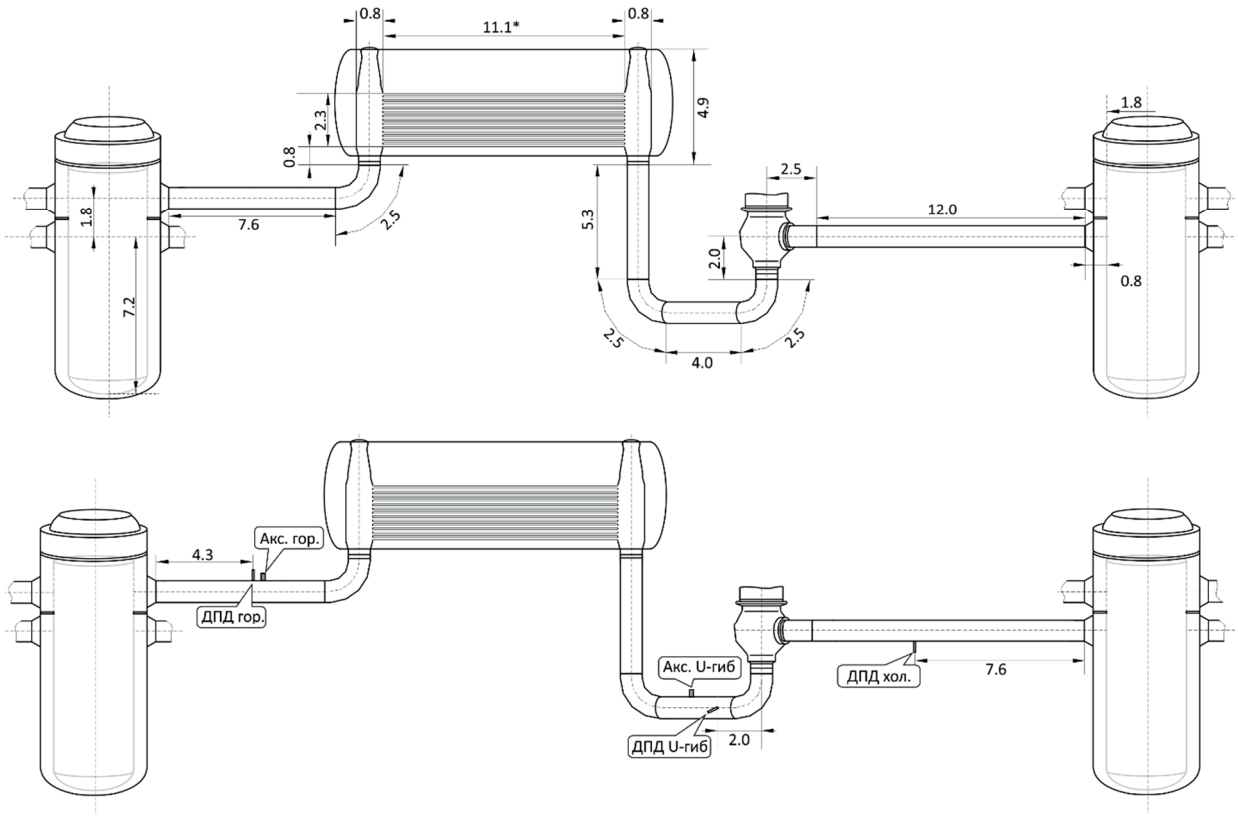


Рис. 1. Развёртка теплообменной петли ГЦК ВВЭР-1200 (верхний рисунок) и схема размещения датчиков – ДПД и акселерометров (нижний рисунок)

Экспериментальное подтверждение кавитационных явлений по сигналам датчиков пульсации давления

При проведении пусконаладочных измерений целесообразно экспериментально подтверждать пренебрежимо малый уровень кавитации ТН путём интерпретации характерных признаков пульсаций давления. Среди таких признаков следует выделить два основных:

– пространственная локальность;

– и частотная широкополосность.

Кавитация – явление локальное, так как под этим явлением подразумевается не только образование пузырьков газа, но и их гибель (схлопывание) в результате локальных изменений давления ТН. Кавитация всегда выше там, где находится источник турбулизации потока ТН, например, в локальной окрестности объёма проточной части ГЦНА. Если среднее время жизни пузырька газа достаточно велико, то прежде чем погибнуть он может быть транспортирован потоком ТН по проточной части ГЦНА на некоторую среднюю длину пробега, тем самым расширяя область, затронутую кавитационным эффектом.

Кроме того, рождение и гибель (схлопывание) пузырька газа вызывает ударную волну давления, которая распространяется по упругой среде, по потоку и против потока ТН на некоторые расстояния, что, в свою очередь, расширяет границы регистрации данного явления при помощи ДПД. То есть, чтобы зарегистрировать кавитацию не обязательно устанавливать ДПД непосредственно в объёме, где рождаются микропузырьки газа, например, в объёме проточной части ГЦНА. Хотя, конечно, чувствительность каналов ДПД к кавитации будет тем выше, чем ближе они расположены к месту образования пузырьков. В этом смысле, при проведении пусконаладочных измерений штатное размещение трёх ДПД в теплообменной петле ГЦК не является оптимальным для контроля кавитации. Ближе всего к ГЦНА расположен ДПД, установленный на U-образном трубопроводе под ГЦНА. Этот ДПД может регистрировать ударные волны, распространяющиеся против потока ТН. ДПД, установленный в «холодном» трубопроводе после ГЦНА, может зарегистрировать оттранспортированные потоком ТН эффекты кавитации и/или – распространение ударной волны в результате гибели пузырьков [10, 11].

Широкополосность спектров сигналов ДПД эффектов кавитации обусловлена не мгновенным рождением и мгновенной гибелью пузырька, а неопределенностью времени жизни пузырька, связанной с длительностью прямоугольного импульса давления ТН. Когда такие акты происходят в случайные (из-за турбулентности) моменты времени, со случайной длительностью и массово в некотором локальном объёме, то результирующий сигнал, регистрируемый ДПД, приобретает не только свойства широкополосности, но и так называемое свойство «белошумности». Спектр пульсаций давления становится близким к спектру белого шума, то есть имеет некоторую постоянную амплитуду в широкой полосе частот без видимых резонансов [9].

На рис. 2 представлены все автоспектральные плотности мощности (АСПМ) сигналов трёх ДПД первой петли, причём каждое семейство АСПМ представлено дважды для удобства их попарного сравнения друг с другом. Максимальной амплитудой отличается сигнал датчика ДПДU, установленного на U-образном трубопроводе. Его АСПМ отличается большим белошумным компонентом, который «маскирует» мелкие резонансные проявления так, что визуализируются только большие по амплитуде резонансы сигналов ДПД компенсатора давления ~ 0.8 Гц, АСВ1п ~9.4 Гц и АСВ высшего типа ~51.0 Гц [11, 12, 13].

Белошумный компонент наблюдается и в АСПМ ДПДх1 (рис. 3). Он много меньше по амплитуде, чем в АСПМ ДПДU1, но является коррелированным с ним. Это важный результат, подтверждающий, что источник белого шума один и тот же. Как правило, два «белошумных» источника не коррелируют друг с другом, то есть их автокорреляционной функцией является δ-функция, а взаимная корреляционная функция и функция когерентности – тождественные нули. Коррелированность двух белых шумов означает, что в каждый момент времени существует общий источник их возникновения, в качестве которого выступает явление кавитации.

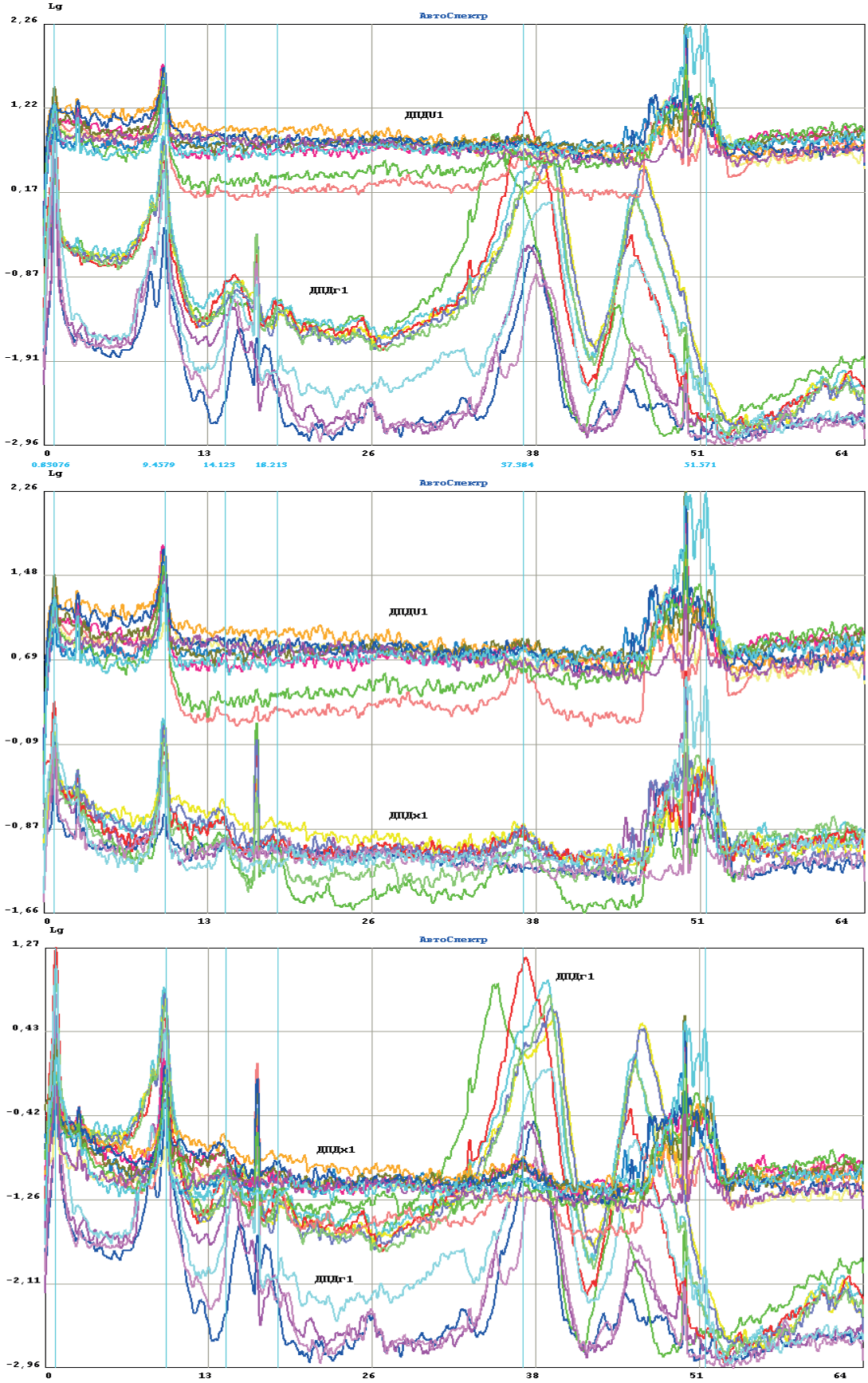


Рис. 2. Автоспектральные плотности мощности сигналов ДПДг1, ДПДU1, ДПДх1 при функционировании ГЦНА1, Ттн = 120 °С

Образование и последующее схлопывание мелкого пузыря газа (или пара) вызывает импульсы давления ТН, регистрируемые и одним, и другим ДПД, притом, что само по себе явление кавитации не имеет ярко выраженных максимумов в спектрах, т.к. рождение/схлопывание пузырьков носит хаотичный, апериодичный характер. Поэтому наличие в спектральных характеристиках участков с признаками «белого шума» является признаком кавитационных явлений [7].

Как видно из рис. 3 функция когерентности сигналов ДПДх-ДПДU достигает высоких значений в широком диапазоне частот от 10 до 50 Гц без видимых резонансов.

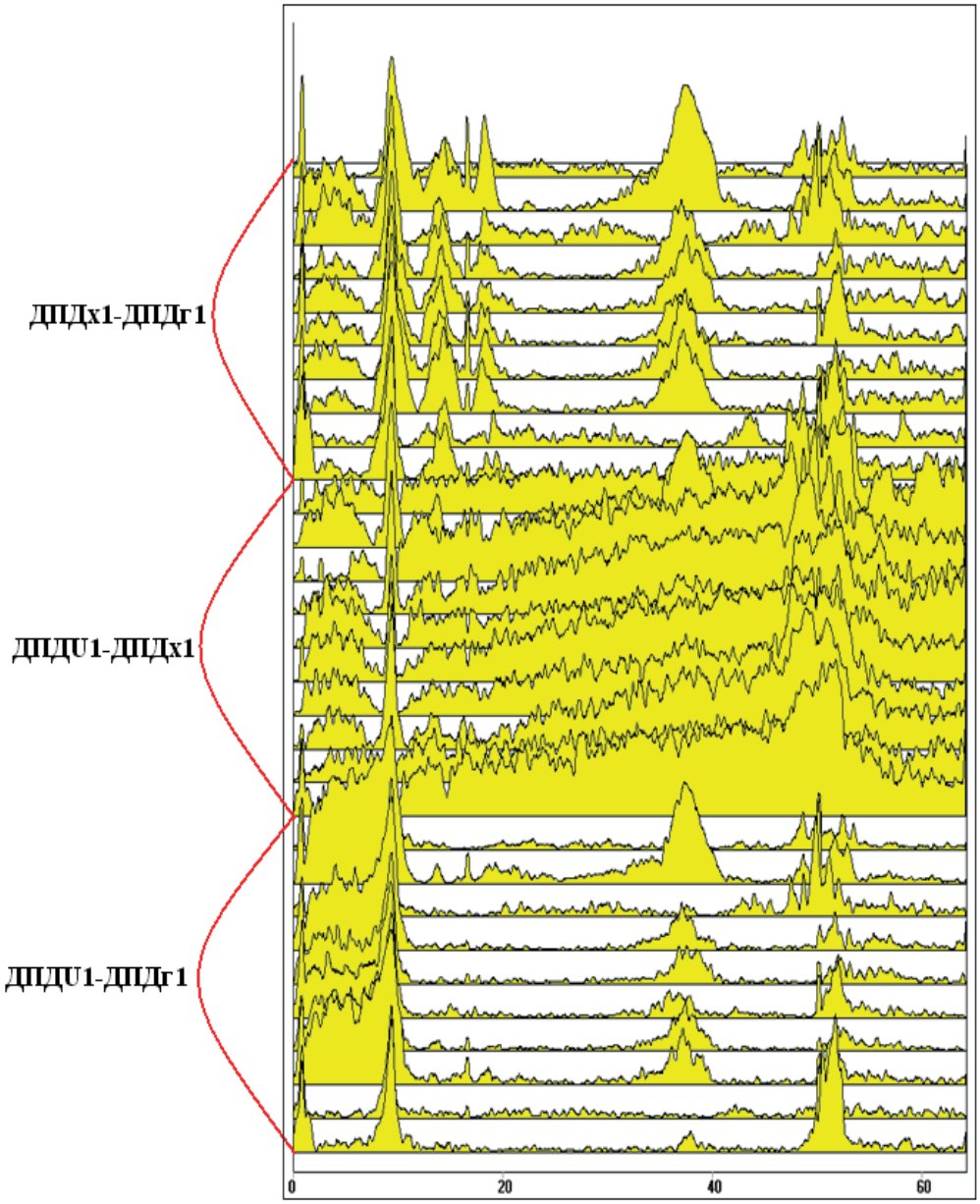


Рис. 3. Функции когерентности сигналов ДПДв десяти регистрациях, Ттн = 120°С:

пара ДПДх1-ДПДг1–верхнее семейство;

пара ДПДU1 -ДПДх1 –среднее семейство;

пара ДПДU1-ДПДг1 – нижнее семейство.

Источником этого широкополосного шума, очевидно, является ГЦНА, расположенный между двумя ДПД: ДПДU и ДПДх. Шум локализован вблизи ГЦНА, так как его максимум наблюдается на ближайшем ДПДU, а на удалённом ДПДг – практически не наблюдается. Неко-

торые пузыри «погибают» уже в потоке ТН, преодолев некоторое расстояние, поэтому ДПДх, расположенный по потоку ТН, более чувствителен к кавитации, чем ДПДг.

Функции когерентности сигналов ДПДU-ДПДг (рис. 3) – практически нулевые в широком поддиапазоне частот, где присутствует белый шум кавитации. Его отсутствие, как адитивного компонента всего в одном сигнале ДПДг, контрастирует функцию когерентности сигналов ДПДг-ДПДх самых удалённых датчиков.

Как видно из рис. 3 указанные свойства широкополосности и локализованности сигналов датчиков ДПД, характерные для кавитационных эффектов, дополняются коррелированностью разнесённых сигналов двух ДПД, между которыми находится ГЦНА.

Заключение

1. В статье приведены данные, полученные в ходе проведения пуско-наладочных измерений и первых эксплуатационных кампаний энергоблоков 1 и 2 Нововоронежской АЭС-2. Ввиду больших объёмов полученной информации авторы ограничились рассмотрением проблемы кавитации, легко выявляемой посредством ДПД.
2. Экспериментально подтверждена возможность кавитационных режимов работы ГЦНА, что свидетельствует о необходимости проведения дополнительных исследований при вводе энергоблоков в эксплуатацию с учетом того, что при проведении стендовых испытаний ГЦНА невозможно полностью смоделировать условия работы агрегата в составе циркуляционной петли. После выявления условий возникновения и оценки последствий проявления кавитационных эффектов для ВВЭР-1200 могут быть предложены конкретные мероприятия по их компенсации в проектном обосновании.
3. Представленные в статье результаты работы актуальны для разработчиков оборудования АЭС в части дополнительного анализа возможности работы оборудования в кавитационных режимах, а также для разработчиков программ проведения пусконаладочных измерений в части планирования дополнительных измерений для выявления кавитационных явлений.
4. Приведенные в статье данные о режимах работы ГЦНА могут быть использованы персоналом АЭС для корректировки эксплуатационной документации для исключения выявленных режимов или минимизации их воздействия на оборудование энергоблоков.

Литература

1. ГОСТ 20911-89. Техническая диагностика. Термины и определения. – М.: Издательство стандартов, 1989. – 13 с.
2. ГОСТ 6134-2007 (ИСО 9906:1999) Насосы динамические. Методы испытаний: межгосударственный стандарт. – М.: Стандартинф, 2008. – 95 с.
3. *Аркадов Г.В.* Виброшумовая диагностика ВВЭР/ Г.В. Аркадов, В.И. Павелко, А.И. Усанов; под ред. А.А. Абагяна. – М.: Энергоатомиздат, 2004. – 344 с.
4. *Павелко В.И.* Опыт проведения комплексных измерений с использованием разнородных систем на различных этапах пуска энергоблока ВВЭР-1200 / В.И. Павелко, М.Т. Слепов, В.У. Хайретдинов // Известия ВУЗов. Ядерная энергетика. – 2016 – № 4. – С. 44–54.

5. *Аркадов Г.В.* Системы диагностирования ВВЭР / Г.В. Аркадов, В.И. Павелко, Б.М. Финкель. – М.: Энергоатомиздат, 2010. – 391 с.

6. *Аникин Г.Г.* Опыт внедрения систем виброконтроля на АЭС с реакторными установками типа ВВЭР-440 / Г.Г. Аникин, В.И. Павелко // Теплотехника. – 1999. – № 6. – С.12–17.

7. *Федоров А.И.* Комплексные измерения диагностических параметров оборудования на блоке 1 НВАЭС-2 в процессе опытно-промышленной эксплуатации / А.И. Федоров, М.Т. Слепов // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2017 – № 3. – С. 77–87.

8. *Аркадов Г.В.* Виброакустика в приложениях к реакторной установке ВВЭР-1200 / Г.В. Аркадов, В.И. Павелко, М.Т. Слепов. – М.: Наука, 2018. – 469 с.

9. *Аркадов Г.В.* Шумовой мониторинг в приложениях к реакторной установке ВВЭР-1200 / Г.В. Аркадов, В.И. Павелко, М.Т. Слепов – М.: Наука, 2021. – 221 с.

10. *Аркадов Г.В.* Виброакустика ВВЭР-1200 / Г.В. Аркадов, В.И. Павелко, М.Т. Слепов // Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР: сборник трудов 11 международной научно-технической конференция 21–24 мая 2019 года ОКБ «Гидропресс», Подольск, Россия.

11. НП-102-17. Основные требования к обоснованию прочности внутрикорпусных устройств реакторов типа ВВЭР: введены приказом № 409 от 05.10.2017 / Федеральная служба по экологическому, технологическому и атомному надзору.

12. *Митенков Ф.М.* Главные циркуляционные насосы АЭС / Ф.М. Митенков, Э.Г. Новинский, В.М. Будов. – М., Энергоатомиздат, 1990. – 376 с.

13. *Arkadov G.V.* Vibration Acoustics Applied to VVER-1200 Reactor Plant / G.V. Arkadov, V.I. Pavelko, M.T. Slepov. – Singapore: WorldScientific, 2021. – 628 p. – ISBN 978-981-123-466-8 https://doi.org/10.1142/12220.

УДК: [543.421/.424 + 543.554]: 621.039.59 DOI:10.52069/2414-5726_2021_4_26_25

Оптическая спектрометрия и мультисенсорная потенциометрия с хемометрической обработкой данных для онлайн мониторинга в атомной промышленности

[1, 2, 3]*Д.О. Кирсанов*, [1, 2]*А.В. Легин*, [2, 4]*В.А. Бабаин*

[1]Санкт-Петербургский государственный университет, Институт химии, Санкт-Петербург, Россия.

[2]Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет ИТМО, Лаборатория искусственных сенсорных систем, Санкт-Петербург, Россия.

[3] ООО «Сенсорные Системы», Санкт-Петербург, Россия.

[4]Компания «ТриАрк Майнинг», Санкт-Петербург, Россия.

Аннотация

Замыкание ядерного топливного цикла предусматривает переработку облученного ядерного топлива. Выделение урана и плутония производят с помощью ПУРЕКС-процесса – жидкостной экстракцией из азотнокислого раствора трибутилфосфатом. В настоящем обзоре рассматриваются возможности онлайн контроля состава технологических растворов методами оптической спектроскопии (ультрафиолетовой-видимой, рамановской и ближней инфракрасной спектроскопии) и мультисенсорной потенциометрии. Показано, что применение современных хемометрических методов обработки аналитических сигналов позволяет получать достоверные данные о содержании контролируемых компонентов (актинидов, лантанидов, азотной кислоты) в технологических растворах.

Ключевые слова: оптическая спектроскопия, БИК-спектроскопия, контроль технологических процессов, потенциометрия, хемометрика.

Optical spectrometry and multisensor potentiometry with chemometric processing of data for online monitoring in nuclear industry

[1, 2, 3]*D.O. Kirsanov*, [1, 2]*A.V. Legin*, [2, 4]*V.A. Babain*

[1]Saint Petersburg State University, Institute of Chemistry, Saint Petersburg, Russia.

[2]Saint Petersburg National Research University ITMO, Laboratory of Artificial Sensor Systems, Saint Petersburg, Russia.

[3]OOO “Sensornye Sistemy”, Saint Petersburg, Russia.

[4]TriArk Mining Co., Saint Petersburg, Russia.

Abstract

The nuclear fuel cycle is closed when used nuclear fuel is reprocessed. Uranium and plutonium are recovered by PUREX reprocessing, i.e. they are extracted from nitric acid solution with tributyl phosphate. The paper discusses the possibilities of on-line monitoring of the process solution composition by using optical spectroscopy methods (UV-Vis, Raman, and NIR spectroscopies) and multisensor potentiometric measurements. It is shown that the use of modern chemometric methods for processing of analytical signals produces reliable

data on the concentration of analytes (actinides, lanthanides, and nitric acid) in the process solutions.

Keywords: optical spectroscopy, NIR spectroscopy, process monitoring, potentiometry, chemometrics.

Введение

Мониторинг производственного процесса и обнаружение отклонений от нормальных условий эксплуатации имеет первостепенное значение для ядерных технологий и, в частности, для переработки облученного ядерного топлива (ОЯТ). Технологии разделения, применяемые в настоящее время для переработки отработавшего ядерного топлива, включая процессы радиохимической переработки облученного ядерного топлива PUREX и UREX +, основаны на жидкостной экстракции. Уран, плутоний и нептуний извлекаются из водных растворов облученного топлива с использованием органических растворителей, а продукты деления остаются в водной фазе [1]. Следующим этапом является извлечение минорных актинидов из рафинатов PUREX-процесса [2, 3, 4]. Распределение каждого элемента между водной и органической фазами и, следовательно, эффективность разделения и очистки, регулируется основными переменными (параметрами) процесса, такими как концентрация кислоты, концентрация металла, температура и т.д. Аналитические проблемы, связанные с PUREX-процессом, были рассмотрены в обзорах [5, 6].

Как и в случае с другими производственными процессами, непрерывный мониторинг дает возможность повысить производительность и минимизировать потери за счет своевременной корректировки параметров PUREX-процесса. Новый подход к решению этих проблем – технология анализа процессов (PAT) предложен в работе [7]. В случае радиохимических процессов такой мониторинг особенно важен. В настоящее время технологические растворы переработки ОЯТ анализируются в основном методами пробоотборного лабораторного контроля с использованием атомно-эмиссионной спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (АЭС-ИСП) [8, 9], масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой (МС-ИСП) [10] и термоионизационной масс-спектрометрии [11] с предварительной подготовкой образца с использованием изотопного разбавления [12] или разделения с использованием высокоэффективной жидкостной или ионной хроматографии [13].

Обзор методов анализа технологических растворов переработки ОЯТ приведен в [14]. Эти методы обеспечивают высокую чувствительность и селективность определения состава, однако они требуют использования дорогостоящего оборудования и больших трудозатрат квалифицированного персонала. К недостаткам проботборных методов относится также необходимость разбавления проб с высоким уровнем радиоактивности. Это приводит к значительной задержке между отбором пробы и получением результата – в отдельных случаях этот разрыв составляет более 15 часов.

Особенность аналитических проблем в ядерной химии – радиоактивность анализируемых растворов, которая иногда может превышать 10^{10} Бк/л. Следовательно, аналитические задачи, такие как отбор и обработка проб, которые очень просты и тривиальны для нерадиоактивных растворов, становятся чрезвычайно сложными и длительными. Следует отметить, что прямой контакт оператора с радиоактивными образцами должен быть сведен к минимуму или, в идеале, исключен. Поэтому неразрушающие методы онлайн контроля особенно привлекательны для анализа радиоактивных растворов.

Для контроля гамма-активных нуклидов возможна организация онлайн контроля на основе счетчиков гамма-излучения [15], однако для актинидов этот метод имеет очень ограниченное применение.

Оперативные измерения состава растворов позволят поддерживать заданные технологические параметры и показатели в требуемых границах, и своевременно корректировать их отклонения. Первичные аналиты, которые необходимо контролировать при переработке ОЯТ, – это металлы, в основном актиниды в различных степенях окисления, редкоземельные элементы, а также азотная кислота.

Приборы, которые можно использовать для оперативного мониторинга переработки облученного ядерного топлива, должны быть надежными, требовать минимального обслуживания и выдерживать жёсткие технологические условия, такие, как высокие уровни радиоактивности и высокие концентрации кислоты. Ультрафиолетовая (УФ) видимая, рамановская и инфракрасная (ИК) спектроскопия в ближней области (БИК), соответствуют требованиям, перечисленным выше, и представляют интерес для количественного определения металлов в растворах. Часто упоминаемый недостаток УФ-видимой спектроскопии заключается в том, что предел обнаружения актинидов составляет около 0.1 г/л. В технологических растворах переработки ОЯТ концентрации урана находятся в интервале от 1 до 300 г/л, плутония от 0.1 до 20 г/л, т.е. концентрации достаточно высоки, чтобы их можно было определять с помощью УФ-видимой спектроскопии. Требование очень низких пределов обнаружения для аналитических приборов, используемых в настоящее время для анализа облученного ядерного топлива, продиктовано необходимостью разбавления проб из-за их высокой радиоактивности. На практике обычно проводят разведение от тысячи до десяти тысяч раз или даже больше, в противном случае обращение с образцами слишком опасно. Использование онлайн методов устраняет эту проблему.

Другой недостаток УФ-видимой спектроскопии – возможное наложение пиков поглощения различных ионов. Непосредственный анализ многокомпонентных образцов с помощью спектроскопии УФ-видимого диапазона затруднен из-за перекрытия полос поглощения компонентов, что препятствует непосредственному использованию этого метода для оперативного контроля промышленных процессов [16]. Для преодоления этого недостатка можно применять методы хемометрики.

Хемометрика – сравнительно молодой раздел химии, занимающийся применением методов обработки многомерных данных для извлечения качественной и количественной химической информации из спектров, хроматограмм, вольтамперограмм и т.п. В последние годы были продемонстрированы успешные применения хемометрических методов в мониторинге технологических процессов [17]. Такие методы обработки применяются для онлайн контроля [18, 19] в технологии экстракции природных продуктов.

Цель данного обзора – продемонстрировать современные возможности онлайн методов контроля в радиохимической технологии. Авторами рассмотрено использование хемометрики для обработки спектров (UV-Vis, рамановских, ближнего ИК) для решения практических задач анализа растворов переработки ОЯТ, поскольку именно там требуется быстрый и надежный ответ о содержании различных металлов в водных растворах. Также рассмотрена возможность определения актинидов и РЗЭ с помощью наборов потенциометрических сенсоров.

Оптическая спектрометрия и хемометрика

Изначально для организации оперативного контроля растворов переработки ОЯТ были предложены методы гамма-спектрометрии и рентгеновской флуоресценции [20]. Сообщения о применении оптических методов, таких как спектроскопия комбинационного рассеяния света (рамановская) [21, 22], УФ-видимой/ближней ИК-области [23] и УФ-видимой [24, 25], для обнаружения неорганических и органических соединений, включая актиниды, появились позже.

Многие лантаниды и актиниды, например, неодим, уран, нептуний, плутоний и америций обладают сильным поглощением в УФ-видимой, ближней ИК-области или в рамановском диапазоне. Это обстоятельство можно использовать для мониторинга состава химических процессов. Однако, традиционный подход к извлечению количественной информации о содержании отдельного соединения из интенсивности спектра на определенной длине волны в реальных технологических растворах зачастую корректно не работает из-за их сложного состава и перекрывания спектральных сигналов различных компонентов. Эффективность УФ-видимой спектроскопии при определении концентраций целевых аналитов в таких условиях может быть значительно улучшена за счет хемометрической обработки данных.

Первые попытки анализа актинидов и азотной кислоты в водном (и органическом) растворе в режиме онлайн были предприняты в 80-х годах 20-го века, когда стала доступна волоконно-оптическая техника [26]. Например, отчет об обнаружении урана в водной и органической фазах с помощью УФ-видимой спектроскопии в экспериментах по экстракции в горячих камерах был представлен в 1986 году [27]. Однако, точность результатов была довольно низкой, так как специализированная математическая обработка спектров не производилась.

Первая попытка объединить УФ-видимую спектроскопию с хемометрикой для анализа актинидов была предпринята в 1988 году. В работах [28, 29] УФ-видимая спектроскопия с оптоволоконным датчиком была протестирована для одновременного определения урана и нитрата, при этом спектры обрабатывались с помощью алгоритма ПЛС-регрессии (метод проекций на латентные структуры), который позволяет создавать математические модели, связывающие спектральные интенсивности в широком диапазоне длин волн с концентрациями целевых компонентов.

В статье [30] дано описание применения ПЛС-регрессии для одновременного количественного определения плутония и азотной кислоты с использованием видимых спектров поглощения в диапазоне 500–880 нм. Хотя определение количественного содержания Pu в этом диапазоне не представляет затруднений, анализ азотной кислоты является более сложной задачей, поскольку она дает лишь незначительный вклад в спектры смеси. Оба аналита были успешно определены количественно в диапазонах концентраций 1.99–29.9 г/л Pu и 0.44–3.08 моль/л HNO_3. Те же авторы сообщили о применении хемометрического подхода на основе метода главных компонент (МГК) для оценки влияния фторида и оксалата на спектры Pu. [31].

Регрессионное моделирование ПЛС использовалось для анализа модельных растворов урана (VI) [32]. Многомерные градуировки для определения как урана (VI), так и нитрата были построены с использованием спектров поглощения в спектральном диапазоне 380–500 нм. Были выбраны диапазоны концентраций, типичные для процесса PUREX: 1–30 г/л для урана и 0.02–3 моль/л для азотной кислоты. Прогнозирование содержаний урана (VI) и нитрата оказалось возможным со среднеквадратичной ошибкой 0.2 г/л и 0.07 моль/л соответственно.

Метод ПЛС был использован для количественного определения Np и Pu в модельных растворах по УФ-видимым спектрам [33]. Все модельные растворы содержали фиксированный фон уранила (50 г/л по урану) и азотной кислоты (2 моль/л), а концентрация Np и Pu изменялась в диапазоне от 0.05 г/л до 1.55 г/л. Средние относительные ошибки определения нептуния и плутония в испытаниях составили 7.1 % и 4.4 % соответственно. Эта работа была продолжена в модельных растворах более сложного состава с использованием как УФ-видимых, так и ИК-спектров для количественной оценки актинидов [34]. Фоновый раствор водной фазы содержал все типичные продукты деления в концентрации, стандартной для растворов переработки ОЯТ. Определение урана, нептуния и плутония как в

водной, так и в органической фазах проводилось с использованием оптических спектров и ПЛС-регрессии. Было показано, что содержание всех ключевых компонентов может быть определено со средними относительными ошибками, не превышающими 10 %.

Содержание урана, азотной кислоты и азотистой кислоты [35, 36] определяли с использованием УФ-видимых спектров (300–500 нм), и метода МЛР (множественная линейная регрессия). Количественное определение всех трех аналитов в системе U (VI) –азотная кислота – 30 % ТБФ (трибутилфосфат, растворенный в керосине) было возможно не только в водной, но и в органической фазе. Авторы отмечают преимущества онлайн мониторинга методом спектроскопии в сочетании с такой обработкой данных.

Рамановская и Вид-БИК-спектроскопия применялась для обнаружения уранил нитрата, плутония (IV) и плутония (VI), нептуния (V) и неодима (III) в ОЯТ [37]. Водные растворы реального топлива АТМ-109 и АТМ-105 и модельные исходные растворы готовили с разными концентрациями азотной кислоты. Проводили экстракцию раствором трибутилфосфата в додекане. Записывали спектры образующихся водной и органической фаз. Модельные исходные растворы использовали для идентификации характеристических полос каждого из компонентов раствора. Рамановские спектры использовались для количественного определения уранила и нитрата, а спектры Вид-БИК – для определения общего Pu, Np (V) и Nd (III). Было обнаружено, что результаты согласуются с измерениями ИСП-МС. В работе [38] рассматривается возможность определения Pu (IV), Pu (VI), Np (V), катион-катионного комплекса Np (V)–U (VI) и Nd (III) в топливных растворах с использованием Вид-БИК спектрометрии. Следует отметить, что аналогичные задачи могут быть решены также с помощью Вид-БИК и рамановской спектроскопии. Например, анализ водных растворов, содержащих разные концентрации азотной кислоты, нитрата натрия и неодима, при различных температурах был изучен в [39]. Была разработана модель, основанная на ПЛС-регрессии и спектроскопических данных, и продемонстрирована ее состоятельность и способность отслеживать изменения химического состава технологического потока. Было обнаружено, что, хотя спектры комбинационного рассеяния и ближнего ИК-диапазона позволяют количественно определять концентрации NO_3^- и H^+, для определения Nd (III) можно использовать только ближний ИК-диапазон. В публикациях [40, 41] предложен метод мониторинга сильнокислых растворов с помощью рамановской спектроскопии.

В работе [42] сделан шаг вперед в применении спектроскопии к реальному управлению технологическими процессами в ядерной технологии. Измерения проводились в водной и органической фазах на экстракционной установке, оснащенной оптическими датчиками Вид-БИК и Рамана, которые были установлены внутри центробежных экстракторов. Калибровочные модели были построены с использованием спектров, измеренных в модельных растворах. Комбинация методов рамановской спектроскопии с хемометрикой позволила осуществлять мониторинг изменений концентраций в диапазоне концентраций уранилнитрата от 0 до 0.6 М, азотной кислоты от 0 до 6 М и общего нитрата от 0 до 7.2 М в режиме. В первых тестах, включающих онлайн измерения на лабораторном оборудовании, о которых сообщалось в этих работах, использовались простые растворы, содержащие только азотную кислоту и уранилнитрат.

К сожалению, в перечисленных выше работах обработка данных описана очень кратко и схематично. Помимо упоминания о том, какие методы использовались, предоставлено очень мало информации. Такие важные вопросы, как предварительная обработка спектров, дрейф сигналов во времени, оценка точности градуировочных моделей, часто не описаны с достаточным уровнем детализации.

Концентрации азотной кислоты, нитрат-иона, общей кислоты (H+), неодима (III), натрия

и ионная сила растворов были определены с одновременным использованием БИК- и рамановской спектроскопии. Обработка данных проводилась комбинацией методов МГК и ПЛС [43, 44].

Сравнение классического метода наименьших квадратов (МНК), метода регрессии на главные компоненты (РГК), метода ПЛС и локально взвешенной регрессии (ЛВР) для количественного определения нитрат и карбонат-ионов с использованием их полос около 1 050 см$^{-1}$ было проведено в работе [45]. Для всех примеров модель на основе ПЛС оказалась наиболее эффективным подходом с точки зрения получаемой точности анализа.

С помощью рамановской спектроскопии и хемометрической обработки сигналов удалось одновременно определять концентрацию таких анионов, как $C_2O_4^{2-}$, CO_3^{2-}, CrO_4^{2-}, NO_3^-, NO_2^-, OH^-, PO_4^{3-} и SO_4^{2-} [46].

Оптические методы поглощения в видимой области спектра, поглощения в ближней инфракрасной области и рамановской спектроскопии были объединены для количественного определения плутония (III, IV, VI), урана (IV, VI), нептуния (IV, V, VI) и азотной кислоты [47]. Хемометрическое моделирование использовалось для количественной оценки аналитов в технологических потоках в режиме реального времени, а результаты были успешно использованы для обеспечения оперативного управления процессом и создания потока продукта с заданным соотношением состава. Это представляет собой значительный шаг вперед, с точки зрения возможности контролировать сложные химические процессы, происходящие в агрессивных химических средах.

Еще одно исследование было направлено на определение актинидов (Np и Pu) в режиме реального времени при их восстановлении на определенной стадии PUREX процесса [48]. Экспериментальные растворы близко имитировали состав реальных промышленных сред, и спектральные измерения (диапазон 184–1000 нм) были выполнены непосредственно в процессе восстановления металлов гидразином. При восстановлении образуются пузырьки газа, что значительно искажает спектры за счет светорассеяния. Определить концентрации различных ионов в растворах удалось только после хемометрической обработки спектров. Более подробное рассмотрение применения хемометрических методов в спектроскопии дано в обзорах [49, 50].

Мультисенсорная потенциометрия и хемометрика

Несмотря на широкие возможности различных вариантов оптической спектрометрии, такие методы характеризуются рядом недостатков. В условиях наличия в анализируемых растворах коллоидных частиц, светорассеивающих примесей (например, пузырьков газа), регистрируемые спектры становятся сильно зашумленными и хемометрическая обработка таких сигналов приводит к высоким значениям ошибок определения целевых компонентов. Стоит отметить, что в технологической цепочке переработки ОЯТ мутные светорассеивающие растворы встречаются на разных этапах. Помимо этого, пределы обнаружения методов оптической спектрометрии зачастую довольно высоки (свыше 50 мг/л), что также делает эти методы непригодными для целого ряда аналитических задач в переработке ОЯТ.

Использование различных лигандов позволяет создавать сенсоры, которые могут быть использованы для определения урана, [51, 52, 53, 54], тория, [55, 56]. Однако, как правило, такие сенсоры недостаточно селективны для определения целевых аналитов в технологических растворах.

В последние годы начал активно развиваться альтернативный подход к разработке методов онлайн контроля, связанный с применением массивов перекрестно-чувствительных потенцио-

метрических сенсоров, также в сочетании с хемометрической обработкой данных. Идеология этого подхода довольно проста: на основе имеющейся библиотеки сенсорных материалов подбираются сенсоры с выраженной чувствительностью к целевым аналитам, например, к лантанидам.

Следует отметить, что селективных сенсоров для определения отдельных лантанидов в настоящее время не существует и их разработка вряд ли возможна на основе существующих в данный момент технологий, поскольку химические свойства лантанидов крайне близки. Использование в составе сенсорных материалов лигандов, обеспечивающих связывание лантанидов, приводит к тому, что такие сенсоры, как правило, обладают выраженной чувствительностью одновременно к нескольким лантанидам и не имеют острой селективности относительно отдельных металлов ряда. Это свойство называется перекрестной чувствительностью. Набор сенсоров на основе различных лигандов в растворах смесей лантанидов будет давать отклик, содержащий в себе информацию обо всех компонентах смеси, к которым сенсоры набора имеют чувствительность. При этом вклад каждого отдельного компонента в отклик отдельного сенсора будет определяться особенностями его перекрестной чувствительности. Так, например, в работе [57], было показано, что полимерные пластифицированные мембраны, содержащие тетраоктил дигликоль амид, проявляют более высокую чувствительность к тяжелым лантанидам, в то время как мембраны на основе дифенилкарбамоил фосфин оксида дают более выраженный отклик на легкие лантаниды. Объединение в одном наборе сенсоров с различным характером перекрестной чувствительности в ряду схожих соединений позволяет получать комплексный аналитический сигнал, который с помощью методов хемометрики можно разложить на составляющие вклады и проводить определение отдельных элементов в анализируемых сложных смесях [58].

Использование такого подхода показало свою перспективность в задачах анализа растворов ОЯТ. Для создания сенсоров с необходимой чувствительностью к актинидам и лантанидам широко используются вещества и закономерности из жидкостной экстракции, где за последние годы предложено значительное число различных классов органических экстрагентов. Принимая во внимание очевидное сходство процессов жидкостной экстракции и формирования отклика полимерных потенциометрических сенсоров, в основе которых лежит процесс комплексообразования металла с лигандом, такое заимствование представляется весьма логичным [59]. За последние годы были исследованы различные классы экстрагентов в качестве потенциальных веществ для создания потенциометрических сенсоров. Так, в работах [60, 61, 62, 63] продемонстрированы возможности создания электродов с выраженной перекрестной чувствительностью к лантанидам на основе различных фосфиноксидов, фосфорилированных подандов, диамидов дипиколиновой кислоты, фенантролин диамидов, модифицированных каликсаренов. Отдельно стоит отметить, что все разработанные сенсоры проявляют электрохимическую чувствительность в кислой среде при значении pH равном 2 и ниже, что нетипично для полимерных пластифицированных мембран, однако, необходимо для реального применения сенсоров. Сравнение сенсорных систем для анализа РЗЭ проведено в работе [64].

Помимо лантанидов первоочередной интерес представляют сенсоры с чувствительностью к актинидам.

В настоящее время исследования по созданию потенциометрических мультисенсорных массивов существенно продвинулись вперед. Показана возможность применения таких устройств в модельных растворах цикла переработки ОЯТ для определения целого ряда различных компонентов. В работе [65] продемонстрирована возможность определения уранила, тория и азотной кислоты в сложных многокомпонентных растворах, содержащих смеси лантанидов с помощью массива из 12 потенциометрических сенсоров с полимерными пластифи-

цированными мембранами. Обработка отклика массива с помощью алгоритма ПЛС позволила получить градировочные модели, дающие средние относительные ошибки определения 17 % (уранил), 14 % (торий) и 7 % (азотная кислота). С учетом чрезвычайно простого и недорогого приборного оформления такого метода и возможности проведения измерений в режиме реального времени, достигнутая точность представляется вполне удовлетворительной.

Исследование [66] посвящено созданию аналогичной методики для количественного определения урана и плутония в модельных рафинатах PUREX процесса. Было показано, что набор потенциометрических сенсоров в сложных смесях позволяет получать даже более высокую точность анализа, чем УФ-Вид спектрометрия.

В работе [67] приведены результаты экспериментов, поставленных с реальными технологическими растворами. Образцы с экспериментальных прогонов процессов ThorEx и Interim-23, предназначенных для переработки ОЯТ, содержащего торий-232 и уран на комбинате «Маяк» (Озерск, Россия) были проанализированы набором из 10 потенциометрических сенсоров. Обработка данных от мультисенсорной системы с помощью метода ПЛС-регрессии позволила проводить одновременное определение содержания урана в диапазоне концентраций 2–7 мг/л (ошибка определения 0.4 мг/л) и тория в диапазоне 42–66 г/л (ошибка определения 2 г/л).

Очевидным препятствием на пути к реальному применению таких мультисенсорных систем в радиоактивных растворах радиохимических производств может стать радиационная устойчивость датчиков. Этот вопрос также изучался и представлен в литературе. Так, в работе [68] была продемонстрирована работоспособность потенциометрических сенсоров с полимерными пластифицированными мембранами вплоть до накопления поглощенной дозы 100 кГр. Свыше этой дозы для ряда изученных сенсоров наблюдалось заметное снижение электрохимической чувствительности и увеличение нижнего предела обнаружения в отношении ионов лантанидов и уранил-иона. Авторами работы с помощью методов электрохимического импеданса и спектроскопии ядерно-магнитного резонанса было установлено, что гамма-облучение приводит как к деградации мембранной матрицы и росту её электрического сопротивления, так и к радиолизу мембраноактивных компонентов, обеспечивающих потенциометрический отклик.

Полученные к настоящему моменту результаты в этом направлении свидетельствуют о его высокой перспективности. Чувствительность определения актинидов и лантанидов методом потенциометрии выше (пределы обнаружения ниже), чем для оптической спектроскопии, хотя существует интервал концентраций определяемых ионов, где можно использовать оба метода. Это позволяет производить взаимную верификацию результатов, что повышает надёжность определения.

Заключение

Онлайн контроль для мониторинга технологических процессов в ядерных технологиях становится всё более востребованным. УФ-видимая, ближняя ИК и рамановская спектроскопия – это простые, доступные и удобные аналитические методы, полностью применимые для онлайн контроля. Можно критиковать их за относительно низкую чувствительность и низкую селективность, однако при работе с реальными технологическими решениями первый недостаток не актуален из-за достаточной концентрации большинства аналитов в технологических потоках, а второй недостаток, связанный с перекрытием сигналов разных компонентов в спектрах, успешно преодолевается применением современных хемометрических методов.

Важно отметить, что в большинстве исследований, о которых сообщалось до сих пор, при-

менялись только самые простые и распространенные хемометрические процедуры, такие как МГК и ПЛС, и даже с этими простыми инструментами полученные результаты довольно убедительны. Методы онлайн контроля не заменяют пробоотборные методы, но являются полезным дополнением к ним.

Последние данные об использовании массивов потенциометрических сенсоров для определения металлов в растворах переработки ОЯТ позволяют сделать заключение о том, что спектральные методы и методы мультисенсорной потенциометрии взаимно дополняют друг друга. Расширение круга доступных методов анализа расширяет возможности аналитического контроля.

Литература

1. *Herbst R.S.* 6 – Standard and advanced separation: PUREX processes for nuclear fuel reprocessing / R.S. Herbst, P. Baron, M. Nilsson // Advanced separation techniques for nuclear fuel reprocessing and radioactive waste treatment. – Woodhead Publishing. – P. 141–175.
2. *Mathur J.N.* Actinide partitioning – A review / J.N. Mathur, M.S. Murali, K.L. Nash. // Solv. Extr. Ion Exch. – 2001. –V. 19. – P. 357–390.
3. *Tachimori S.* Overview of solvent extraction chemistry for reprocessing / S. Tachimori, Y. Morita // Ion Ex. Solv. – 2011. – V. 19. – P. 15–17.
4. *Аляпышев М.Ю.* Выделение минорных актинидов из высокоактивных отходов – современные тенденции. / М.Ю. Аляпышев, В.А. Бабаин, Ю.А. Устынюк // Успехи химии. – 2016. – Т. 85(9). – С. 943–961.
5. *Baumgärtner F.* The modern PUREX process and its analytical requirements / F. Baumgärtner, D. Ertel // Journal of Radioanalytical Chemistry. – 1980. – V. 58(1-2). – P. 11–28.
6. *Ache H.J.* Analytical chemistry in nuclear technology // Fresenius J. Anal. Chem. – 1992. – V. 343. – P. 852–862.
7. *Pomerantsev A.L.* Process analytical technology: a critical view of the chemometricians / A.L. Pomerantsev, O.Ye. Rodionova // J. Chemometrics. – 2012. – V. 26. – P. 299–310.
8. Определение концентраций продуктов деления методом АЭС-ИСП в технологических растворах при переработке ОЯТ / Ю.А. Наумова, Н.В. Сапожникова, О.Н. Егорова, А.А. Лумпов // Радиохимия. – 2017. – Т. 59(6). – С. 544–548.
9. Определение РЗЭ в азотнокислых растворах с высоким содержанием урана и макрокомпонентов / Ю.А. Наумова, Н.В. Сапожникова, О.Н. Егорова, А.А. Лумпов // Журнал аналитической химии. – 2015. – Т. 70(4). – С. 389–389.
10. New advances in inductively coupled plasma–mass spectrometry (ICP-MS) for routine measurements in the nuclear industry / R. Henry, D. Koller, M. Liezers, O.T. Farmer III; C. Barinaga, D.W. Koppenaal, J. Wacker // J. Radioanal. Nucl. Chem. – 2001. – V. 249. – P. 103–108.
11. *Richter S.* Improved techniques for high accuracy isotope ratio measurements of nuclear materials using thermal ionization mass spectrometry / S. Richter, S.A. Goldberg // J. Mass Spectrom. – 2003. – V. 229. – P. 181–197.
12. *Chartier F.* Determination of Am and Cm in spent nuclear fuels by isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry and isotope dilution thermal ionization mass spectrometry after separation by high-performance liquid chromatography / F. Chartier, M. Aubert, M. Pilier // Fresenius J. Anal. Chem. – 1999. – V. 364. – P. 320–327.

13. *Betti M.* Use of ion chromatography for the determination of fission products and actinides in nuclear applications // J. Chromatogr. A. – 1997. – V. 789. – P. 369–379.

14. Аналитические методы определения компонентов жидких радиоактивных отходов / Ю.А. Пантелеев, А.М. Александрук, С.А. Никитина, Т.П. Макарова, Е.Р. Петров, А.Б. Богородицкий, М.Г. Григорьева // Труды Радиевого института им. В.Г. Хлопина. – 2007. – Т. 12. – С. 124–147.

15. Design of an on-line monitoring system for radioactive wastewater / Q. Guoxiu, Y. Xu, L. Wang, X. Zhang, W. Zhou, W. Li // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2017. – V. 314(1). – P. 215–220.

16. *Lobiński R.* Recent Advances in Ultraviolet-Visible Spectrophotometry / R. Lobiński, Z. Marczenko // Crit. Rev. Anal. Chem. – 1992. – V. 23. – P. 55–111.

17. *Wold S.* Chemometrics, present and future success / S. Wold, M. Sjöström // Chemom. Intel. Lab. Syst. – 1998. – V. 44. – P. 3–14.

18. NIR spectroscopy as a process analytical technology (PAT) tool for on-line and real-time monitoring of an extraction process / Y. Wu, Y. Jin, Y. Li, D. Sun, X. Liu, Y. Chen // Vibrational Spectroscopy. – 2012. – V. 58. – P. 109–118.

19. On-line monitoring the extract process of Fu-fang Shuanghua oral solution using near infrared spectroscopy and different PLS algorithms. / Q. Kang, Q. Ru, Y. Liu, L. Xu, J. Liu, Y. Wang, Q. Wu // Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy. – 2016. – V. 152. P. 431–437.

20. *Parus J.* Online control of nuclear fuel reprocessing / J. Parus, J. Kierzek, T. Zoltowski // Nukleonika. – 1977. – V. 22. – P. 759–776.

21. *Madic C.* Raman spectrometric studies of actinide (V) and actinide (VI) complexes in aqueous sodium-carbonate solution and of solid sodium actinide (V) carbonate compounds / C. Madic, D.E. Hobart, G.M. Begun / Inorg. Chem. 1983. – V. 22. – P. 1494–1503.

22. Raman spectroscopy of neptunyl and plutonyl ions in aqueous solution: neptunium (VI) and plutonium (VI) and disproportionation of plutonium(V) / C. Madic, G.M. Begun, D.E. Hobart, R.L. Hahn // Inorg. Chem. – V. 23. – P. – 1914–1921.

23. *Colston B.J.* Evaluating the performance of a stopped-flow near-infrared spectrophotometer for studying fast kinetics of actinide reactions / B.J. Colston, G.R. Choppin // J. Radioanal. Nucl. Chem. – 2001. – V. 251. – 21–26.

24. *Janssens-Maenhout G.* Feasibility study of a microsystem to analyse radioactive solutions / G. Janssens-Maenhout, S. Nucifora. // Nucl. Eng. Design. – 2007. – V. 237. – P. 1209–1219.

25. *Warburton J.* Method for online process monitoring for use in solvent extraction and actinide separations / J. Warburton, N. Smith, K. Czerwinski // Sep. Scie. Technol. – 2010. – V. 45. – P. 1763–1768.

26. *Boisde* G. Remote Spectrometry With Optical Fibers, Ten Years Of Development And Prospects For On-Line Control / G. Boisde, J. J. Perez // Proc. SPIE 0514, 2nd Intl. Conf. on Optical Fiber Sensors: OFS'84, 227 (November 21, 1984). – URL: http://dx.doi.org/10.1117/12.945088, last accessed on 25.08.2016.

27. *Moser D.R.* Application of in-line photometer to solvent extraction process control, Control and instrumentation / D.R. Moser, L.N. Klatt // (1986) URL: http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/18/050/18050429.pdf, last accessed on 25.08.2016.

28. *Van Hare D.R.* Online fiber optic spectrophotometry (No. DP-MS-88-186; CONF-881143-1) / D.R. Van Hare, P.E. O'Rourke, W.S. Prather // Savannah River National Laboratory Report, Aiken, USA,1988. – URL: http://www.osti.gov/scitech/biblio/6710161, last accessed on 25.08.2016.

29. *O'Rourke P.E.* On-line process control monitoring system: US Patent 5131746 (1992) / P.E. O'Rourke, D.R. Van Hare, W.S. Prather.

30. *Carey W.P.* Spectrophotometric Method for the Analysis of Plutonium and Nitric Acid Using Partial Least-Squares Regression / W.P. Carey, L.E. Wangen // Anal. Chem. – 1989. – V. 61.– P. 1667–1669.

31. *Carey W.P.* Determining chemical characteristics of plutonium solutions using visible spectrometry and multivariate chemometric methods / W.P. Carey, L.E. Wangen // Chemom. Intell. Lab. Syst. – 1991. – V. 10. – P. – 245–257.

32. *Biirck J.* Spectrophotometric determination of uranium and nitric acid by applying partial least squares regression to uranium (VI) absorption spectra // Anal. Chim. Acta. – 1991. – V. 254. – P. 159–165.

33. Combination of optical spectroscopy and chemometric techniques – a possible way for on-line monitoring of spent nuclear fuel (SNF) reprocessing / D. Kirsanov, V. Babain, M. Agafonova-Moroz, A. Lumpov, A. Legin // Radiochim. Acta. – 2012. – V. 100. – V. 185–188.

34. Approach to on-line monitoring of PUREX process using chemometric processing of the optical spectral data / D. Kirsanov, V. Babain, M. Agafonova-Moroz, A. Lumpov, A. Legin // Radiochim. Acta. – 2013. – V. 101. –V. 149–154.

35. *Li L.* Simultaneous spectrophotometric determination of uranium, nitric acid and nitrous acid by least-squares method in PUREX process / L. Li, H. Zhang, G.A. Ye // J. Radioanal. Nucl. Chem. – 2013. – V. 295. – P. 325–330.

36. *Bai X.* On-line monitoring of the U(VI) concentration in 30 vol. % TBP/kerosene: An evaluation of real-time analysis in polyetheretherketone (PEEK) containers via Raman spectroscopy / X. Bai, D.-M. Li, Z.-Y. Chang, D.-J. Fan, J.-P. Liu, H. Wang // J. Radioanal. Nucl. Chem. – 2015. – V. 305. – P. 643–652.

37. Spectroscopic on-line monitoring for process control and safeguarding of radiochemical streams in nuclear fuel reprocessing facilities / S.A. Bryan, T.G. Levitskaia, A.J. Casella, J.M. Peterson, A.M. Johnsen, A.M. Lines, E.M. Thomas // Advanced separation techniques for nuclear fuel reprocessing and radioactive waste treatment. – 2011. – P. 95-119.

38. Spectroscopic monitoring of spent nuclear fuel reprocessing streams: an evaluation of spent fuel solutions via Raman, visible, and near-infrared spectroscopy / S.A. Bryan, T.G. Levitskaia, A.M. Johnsen, C.R. Orton, J.M. Peterson // Radiochim. Acta. – 2011. – V. 99. – P. 563–572.

39. Spectroscopic and physicochemical measurements for on-line monitoring of used nuclear fuel separation processes / K. Nee, S. Bryan, T. Levitskaia, M. Nilsson // Proc. of Int. Conf. GLOBAL-2013, Salt Lake City, Utah, September 29 - October 3, 2013. – P. 931–935. – URL: http://toc.proceedings.com/21109webtoc.pdf, last accessed on 25.08.2016.

40. Water O-H stretching Raman signature for strong acid monitoring via multivariate analysis/ A.J. Casella, T.G. Levitskaia, J.M. Peterson, S.A. Bryan // Anal. Chem. – 2013. – V. 85. – P. 4120–4128.

41. Development of online spectroscopic pH monitoring for nuclear fuel reprocessing plants: Weak acid schemes / A.J. Casella, L.R.H. Ahlers, E.L. Campbell, T.G. Levitskaia, J.M. Peterson, F.N. Smith, S.A. Bryan // Anal. Chem. – 2015. – V. 87. – P. 5139–5147.

42. Spectroscopic online monitoring for process control and safeguarding of radiochemical fuel reprocessing streams / S.A. Bryan, T.G. Levitskaia, A. Casella, J. Peterson // In the Proc of WM2013 Conference, Phoenix, Arizona USA, February 24-28, 2013. – URL: http://www.wmsym.org/archives/2013/papers/13553.pdf , last accessed on 20.08.2016.

43. In situ monitoring and kinetic analysis of the extraction of nitric acid by tributyl phosphate in n-dodecane using Raman spectroscopy / E. S. Asmussen [et. al.] // Solvent Extraction and Ion Exchange. – 2019. – V. 37(2). – P. 157–172.

44. Combinations of NIR, Raman spectroscopy and physicochemical measurements for improved monitoring of solvent extraction processes using hierarchical multivariate analysis models / K. Nee, S.A. Bryan, T.G. Levitskaia, J.W.J. Kuo, M. Nilsson // Anal. Chim. Acta. – 2018. – P. 1006, 10–21.

45. Quantification of Raman-Interfering Polyoxoanions for Process Analysis: Comparison of Different Chemometric Models and a Demonstration on Real Hanford Waste / P. Tse, J. Shafer, S.A. Bryan, A.M. Lines // Environmental Science & Technology. – 2021.

46. Online, Real-Time Analysis of Highly Complex Processing Streams: Quantification of Analytes in Hanford Tank Sample / Lines A.M. [at. al.] // Industrial & Engineering Chemistry Research. – 2019. – V. 58(47). – P. 21194–21200.

47. Sensor Fusion: Comprehensive Real-Time, On-Line Monitoring for Process Control via Visible, Near-Infrared, and Raman Spectroscopy / Lines A.M. [at. al.] // ACS Sensors. – 2020. – V. 5(8). – P. 2467–2475.

48. Restoring important process information from complex optical spectra with MCR-ALS: Case study of actinides reduction in spent nuclear fuel reprocessing / B. Debus, D. Kirsanov, C. Ruckebusch, M. Agafonova-Moroz, V. Babain, A. Lumpov, A. Legin // Chemom. Intel. Lab. Syst. – 2015. – V. 146. – P. 241–249.

49. UV–Vis spectroscopy with chemometric data treatment: an option for on-line control in nuclear industry / D. Kirsanov, A. Rudnitskaya, A. Legin, V. Babain // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2017. – V. – 312(3). – P. 461–470.

50. Review of on-line and near real-time spectroscopic monitoring of processes relevant to nuclear material management / P. Tse, S.A. Bryan, N.P. Bessen, A. M. Lines, J.C. Shafer // Analytica chimica acta. – 2020. – V. 1107. – P. 1–13.

51. *Serebrennikova N.V.* Uranyl ion selective electrode with a membrane based on a mixture of di-2-ethylhexylphosphate and tributylphosphate in benzene / N.V. Serebrennikova, N.V. Plotenikova //Zh. AnalKhim. – 1982. – V. 37. – P. 645–649.

52. *Hassan S.S.* PVC membrane based potentiometric sensors for uranium determination / S.S. Hassan, M.M. Ali, A.M. Attawiya //Talanta. – 2001. – V. 54(6). – P. 1153–1161.

53. *Zidan W.I.* Development of potentiometric sensors for the selective determination of UO2 + ions. / W.I. Zidan, I.H. Badr, Z.F. Akl // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2015. – V. 303(1). – P. 469–477.

54. New Hybrid Polymer Membrane for Potentiometric Uranium-Selective Sensor. / A.V. Kopytin [at. fl.] // Doklady Chemistry. – 2020. – Vol. 491, No. 2. – P. 57–60. Pleiades Publishing.

55. *Chandra S.* A highly selective and sensitive thorium (IV) PVC membrane electrode based on a dithio-tetraaza macrocyclic compound / S. Chandra, H. Agarwal, C.K. Singh // Analytical sciences. – 2007. – V. 23(4). – P. 469–473.

56. A Polymeric Membrane Electrode Based on p-tert-butyl-thiacalix arene Derivative for Thorium Determination / S. Tyagi, H. Agarwal, S. Ikram, M.K. Gupta, S. Singh // Anal. Bioanal. Electrochem. – 2011. – V. 3. – P. 436–449.

57. Cross-sensitive rare earth metal ion sensors based on extraction systems / A.V. Legin, V. A. Babain, D.O. Kirsanov, O.V. Mednova // Sensors and Actuators B: Chemical. – 2008. – V. 131(1). – P. 29–36.

58. Potentiometric sensor array for analysis of complex rare earth mixtures / D. Kirsanov, M. Khaydukova, L. Tkachenko, A. Legin, V. Babain // Electroanalysis. – 2012. – V. 24(1). – P. 121–130.

59. Multisensor systems for chemical analysis: Materials and Sensors / Eds. L. Lvova, D. Kirsanov, C. Di Natale, A. Legin. – New York: Pan Stanford, 2014. – 400 p.

60. Polymer sensors based on extraction systems for the determination of rare earth metals / D.O. Kirsanov, A.V. Legin, V.A. Babain, Y.G. Vlasov // Zhurnal Prikladnoj Khimii. – 2005. – V. 78(4). – P. 575–580.

61. Calixarenes functionalized with phosphine oxide and diamide functions as extractants and ionofores for rare-earth metals / M.Y. Alyapyshev, V.A. Babain, V.I. Boyko, I.I. Eliseev, D.O. Kirsanov, O.V. Klimchuk, I.V. Smirnov // Journal of Inclusion Phenomena and Macrocyclic Chemistry. – 2010. – V. 67(1–2). – P. 117–126.

62. 10-Phenanthroline-2, 9-dicarboxamides as ligands for separation and sensing of hazardous metals / M. Alyapyshev [et.al.] // RSC advances. – 2016. – V. 6(73). – P. 68642–68652.

63. Polymeric sensors based on extraction systems for determination of rare-earth metals / D.O. Kirsanov, A.V. Legin, V.A. Babain, Y.G. Vlasov // Russian journal of applied chemistry. – 2005. – V. 78(4). – P. 568–573.

64. Potentiometric Sensors and Multisensor Systems for the Determination of Lanthanides / I.S. Yaroshenko, M.Y. Alyapyshev, V. A. Babain, A.V. Legin, D.O. Kirsanov // Journal of Analytical Chemistry. – 2019. – V. 74(10). – P. 1003–1018.

65. Potentiometric multisensor system for tetra- and hexavalent actinide quantification in complex rare earth metal mixtures related to spent nuclear fuel reprocessing / E. Oleneva [et. al.] // Sensors and Actuators B: Chemical. – 2019. – V. 288. – P. 155–162.

66. Plutonium (IV) quantification in technologically relevant media using potentiometric sensor array / J. Savosina [et. al.] // Sensors. – 2020. – V. 20(6). – P. 1604.

67. Quantification of thorium and uranium in real process streams of Mayak radiochemical plant using potentiometric multisensor array / M. Agafonova-Moroz [et. al.] // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2020. – V. 323(1). – P. 605–612.

68. On the radiolytic stability of potentiometric sensors with plasticized polymeric membranes / J. Savosina [et. al.] // Chemosensors. – 2021. – V. 9(8). – P. 214.

УДК 681.518.3 DOI:10.52069/2414-5726_2021_4_26_38

Разработка алгоритмов диагностирования технических объектов различного назначения

В.А. Василенко[1], А.М. Панкин[1], И.А. Тутнов[2]

[1] ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия
[2] Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», Москва, Россия

Аннотация

В статье рассмотрены основные этапы разработки алгоритмов диагностирования сложных технических объектов, для которых предполагается создание систем диагностирования нового поколения. Ранее создаваемые системы диагностирования в основном ориентировались на решение задач неразрушающего контроля, которые не позволяют в достаточной мере выполнять оценку остаточного ресурса контролируемых объектов. Для повышения точности диагностирования состояния изделий и систем в процессе их эксплуатации при проектировании этих объектов необходимо предусмотреть возможность получения наиболее информативных измерительных данных о их техническом состоянии. С этой целью в алгоритмы диагностирования новых систем должны вводиться блоки, определяющие наиболее информативные диагностические признаки объектов, которые могут быть получены при проведении соответствующих диагностических измерений. Особое внимание необходимо обратить на оценку неопределенностей прямых и косвенных измерений. Эти вопросы еще не решены в достаточной мере, о чем свидетельствуют нормативные документы по метрологии.

Ключевые слова: технический объект, контроль, диагностирование, техническое состояние, диагностический признак, математическая модель, диагностическая модель, измерительная информация, диагноз, неопределенность.

Development of diagnosis algorithms for technical objects of different purpose

V.A. Vasilenko[1], A.M. Pankin[1], I.A. Tutnov[2]

[1] FSUE “Alexandrov NITI”, Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia
[2] National Research Center “Kurchatov Institute”, Moscow, Russia

Abstract

The paper describes the main steps of development of diagnosis algorithms for complex technical objects for which new generation diagnosis systems are expected to be designed. Previous diagnostic systems were mainly designed for non-destructive testing. However, non-destructive testing is not sufficient to adequately determine residual life of test objects. The in-service condition monitoring accuracy of components and systems can be improved if they are designed with features allowing acquisition of the most informative condition measurements. In view of this, diagnosis algorithms for new technical systems should include modules capable of selecting the most informative diagnostic indicators that can be obtained during diagnostic measurements. A special attention should be paid to the issues of uncertainty assessment of direct and indirect measurements because these issues are not completely resolved in metrology standards.

Key words: technical object, monitoring, diagnostics, condition, diagnostic indicator, mathematical model, diagnostic model, measurement information, diagnosis, uncertainty.

Введение

При проектировании технических объектов необходимо обеспечить их надежное функционирование в течение заданного срока эксплуатации. Для достижения этой цели, наряду с другими подходами, создаются системы диагностирования (СД) состояния технических объектов [1]. Особое значение приобретает создание СД, если речь идет об объектах, важных для безопасности большого количества людей [2]. К их числу относятся и объекты атомной энергетики. Наиболее эффективное использование СД достигается в случае, если её проектирование осуществляется одновременно с проектированием самого нового технического объекта [3].

В настоящее время актуальной задачей для диагностирования состояния многих технических объектов является оценка их фактического состояния [1] на момент выполнения процедуры диагностирования. Решение данной задачи позволит ремонтировать оборудование тогда, когда в этом возникает необходимость и избежать преждевременных и ненужных остановок и разборок вполне работоспособных изделий. По этим причинам в начале 2000-х годов в ОАО «Концерн Росэнергоатом» была рассмотрена стратегия о переходе с обслуживания оборудования по регламенту на «техническое обслуживание и ремонт по фактическому состоянию».

Для создания эффективной СД состояния объектов, нужно рассмотреть ряд вопросов, первым из которых является разработка алгоритмов диагностирования технического состояния для данного объекта или целого класса однотипных объектов. Один из путей решения указанной задачи представлен в данной статье.

В статье обсуждаются следующие вопросы:

- определение контролируемых структурных параметров объекта;
- построение диагностической модели объекта;
- выбор режима и метода диагностирования;
- оценка информативности диагностических измерений;
- проблемы оценки неопределенностей прямых и косвенных измерений.

Представленная в статье методология может быть применена для группы однотипных непрерывных технических объектов при наличии соответствующим образом подготовленной математической модели (ММ). Точность диагноза о техническом состоянии в момент проведения диагностических измерений связана с набором функций работоспособности объекта, объёмом и номенклатурой доступных для прямых измерений величин и оценками неопределенностей диагностических признаков контролируемых объектов.

1. Диагностирование при отсутствии информации о структуре контролируемого объекта

При создании СД объектов атомной энергетики и других значимых и потенциально опасных объектов техники предполагается наличие ММ контролируемых объектов. Для менее значимых объектов вопрос создания СД может не ставится, поскольку создание таких систем является достаточно затратным и требует привлечения к этой работе квалифицированных специалистов.

Если предположить, что информация о структуре объекта отсутствует [4], то в качестве ММ процессов в контролируемом объекте предлагается рассматривать коэффициенты передачи или передаточные функции, связывающие входные воздействия, подаваемые на объект в режиме рабочего функционирования, и выходные реакции объекта на эти воздействия. Для получения такой модели требуется измерительная информация, получаемая при работе объекта в

штатном или в тестовом режимах функционирования, когда подаваемые входные воздействия отличаются от номинальных значений. Последний режим необходим в случае нелинейных зависимостей между рассматриваемыми величинами. При последовательном проведении диагностических измерений в процессе эксплуатации отслеживается изменение коэффициентов передачи объекта. При приближении функций работоспособности к предельным значениям объект может перейти в неработоспособное состояние. При отсутствии информации о структуре объекта и отсутствии полноценной ММ процессов, реализующихся в контролируемом объекте при отработке им заданного ресурса, невозможно с требуемой точностью предсказать момент времени, когда объект перейдет в неработоспособное состояние. Связано это с возможным не монотонным характером в изменении контролируемых величин.

2. Построение математической модели и определение диагностических признаков объекта

Создание ММ объекта, содержащей описание процессов, реализующихся в контролируемом объекте, необходимо для получения диагностической модели объекта и формирования набора его диагностических признаков [1], [5]. В качестве диагностических признаков (ДП) целесообразно рассматривать некоторые структурные параметры или характеристики объекта, при нахождении значений которых в соответствующих диапазонах объект сохраняет работоспособное состояние по выполняемым функциям [6]. При приближении ДП к границам допустимых для работоспособного состояния областей объект диагностирования (ОД) приближается к своему предельному состоянию, а его остаточный ресурс приближается к нулю.

Рассмотрим ММ объекта, связывающую векторы выходных реакций $\vec{Y}$ и входных воздействий $\vec{X}$ в виде уравнения $\vec{Y} = \hat{A}\vec{X}$, где в состав матрицы $\hat{A}$ входят структурные параметры объекта, часть из которых отнесем к разряду диагностических признаков $\vec{Z}$. Изменение ДП происходит со временем и зависит от внешних факторов и режимов работы объекта. При этом могут рассматриваться следующие внешние и внутренние факторы, присутствующие при эксплуатации объекта: старение, тепловые поля, влажность, радиация, механические воздействия (удары, вибрации и др.). Выделим указанные факторы в отдельную группу $\vec{F}$ и рассмотрим их влияние на ДП объекта $\vec{Z}$.

Связь между вектором диагностических признаков $\vec{Z}$ и вектором внешних и внутренних факторов, присутствующих при эксплуатации объекта, определим соотношением вида: $\vec{Z} = \hat{B}\vec{F}$, здесь $\hat{B}$ – матрица коэффициентов.

Рассмотрим задачу изменения ***n*** диагностических признаков объекта под влиянием группы факторов $\vec{F}$, общее количество которых равно ***m***. Будем полагать, что каждый из перечисленных факторов в течение эксплуатации объекта влияет на какое-то одно свойство части объекта или размер между его отдельными частями, изменение которых и приводит к изменению ДП объекта. Определим это влияние в количественной мере, рассматривая векторную функцию $\vec{F}(t)$, которая отражает изменение со временем факторов выделенной группы в процессе эксплуатации объекта и значения компонентов которой f_i могут при этом изменяться от нуля до максимального значения $f_k^{\max}$, k = 1, 2, ..., m. Следствием этого изменения будет относительное изменение вектора ДП, который будем рассматривать как временную функцию $\vec{Z}(t)$. Значения компонентов этого вектора, при которых объект сохраняет работоспособное состояние, будем рассматривать в диапазонах (z_j^1, z_j^2), j = 1, 2,..., n. При выходе значения

хотя бы одного ДП за соответствующие пределы величина одной или нескольких рабочих функций объекта будет иметь недопустимо малые или большие значения, соответствующие потере объектом работоспособного состояния.

Рассмотрим матрицу коэффициентов чувствительности l рабочих функций объекта $\vec{Y} = (y_1(t), y_2(t), ..., y_l(t))$ к изменению n диагностических признаков $\vec{Z} = (z_1(t), z_2(t), \ldots, z_n(t))$ и запишем её в виде $\hat{S} = \{s_i^j(t)\}$, где i – номер функции ($i = 1, 2,..., l$), j – номер диагностического признака ($j = 1, 2,..., n$).

Коэффициент чувствительности $s_i^j(t)$ представим в виде (1):

$$s_i^j(t) = \left\{ \frac{(y_i(t) - y_i^{ном})}{y_i^{ном}} \right\} \Big/ \left\{ \frac{(z_j(t) - z_j^{ном})}{z_j^{ном}} \right\} = \delta y_i(t) / \delta z_j(t) \ , \qquad (1)$$

где

$z_j^{ном}$, $y_i^{ном}$ – номинальные (начальные) значения j-го диагностического признака и i-той рабочей функции, соответственно;

$\delta z_j(t)$, $\delta y_i(t)$ – относительные изменения j-го диагностического признака и i-той рабочей функции.

По значениям коэффициентов чувствительности, полученным по ММ объекта, составляется список потенциальных диагностических признаков объекта, количество которых стараются минимизировать для более эффективной идентификации этих величин по результатам диагностических измерений во время эксплуатации объекта.

3. Определение функций работоспособности и функций безопасности объекта

После построения структурной схемы объекта с учетом приемлемого уровня детализации, определяются параметры структурных единиц схемы, из которых часть параметров выбирается в качестве ДП объекта. Приемлемый уровень детализации выбирается исходя из реальных пределов при дроблении объекта на более мелкие части, которые диктуются экономическими соображениями, исходя из которых, контролировать и заменять в случае ремонта объекта проще отдельные блоки, а не отдельные элементы этих блоков. Так мы подходим к *нижней границе*, до которой доходит детализации при создании ММ контролируемого объекта.

В то же время, параметры структуры объекта должны как-то отражать протекающие в них физические процессы. Тогда становиться понятным, что измерение параметров процессов, протекающих в объекте, делает возможным и идентификацию (косвенное определение) структурных параметров (ДП) объекта на основе параметров этих процессов. Так, например, измерение величин электрического тока и напряжения на элементах электрической цепи (параметры состояния или процесса) позволяет на основе законов Кирхгофа (законов сохранения заряда и энергии) выполнить идентификацию параметров элементов (структурных параметров) этой цепи.

При недостатке измерительной информации по непосредственно измеряемым в процессе диагностирования величинам (прямые измерения) выполняется укрупнение элементов объекта и переход к его новым структурам. При этом понятно, что диагностические признаки новых структур в виде диагностических характеристик будут значительно сложнее диагностических параметров прежней структуры. Это вызывает определенные трудности при нахождении допусковых границ новых ДП и мониторинг этих характеристик при эксплуатации объекта.

При определении *верхней границы* детализации структуры объекта желательно получить такую структурную схему, которая включает элементы с параметрами, имеющими простой физический смысл. А также для этой схемы должна быть при диагностировании получена измерительная информация, необходимая для идентификации параметров структуры объекта. Тогда не возникает необходимости в укрупнении в одну структурную единицу элементов разной физической природы (например, резистор и индуктивность), что значительно усложняет диагностическую характеристику нового ДП.

С параметрами структуры объекта связан вопрос о рабочих функциях диагностируемого объекта, которые были определены конструктором изделия на этапе его проектирования. Напомним, что рабочие функции представляют величины, связанные с протекающими в объекте процессами при его работе в штатном режиме. Если такой функцией в объекте электрической природы, является мощность, выделяемая, например, в резисторе, то ее можно определить в виде произведения двух параметров электрического процесса: тока и напряжения. Если рабочей функцией является уже энергия, которая снимается или выделяется в данном элементе цепи, то к двум указанным величина добавится третья – время. Тогда эта функция будет определяться как интеграл от указанного произведения по времени, если подынтегральная величина не будет постоянной на интервале интегрирования.

Из этих примеров уже видно, какое количество и разнообразие рабочих функций может рассматриваться на практике. И с рассмотрением новых объектов количество, типы и специфика рабочих функций будут только увеличиваться и расширяться. Поэтому к определению количества и номенклатуры рабочих функций следует переходить после определения конкретного объекта диагностирования, так как создание алгоритмов диагностирования требует значительных средств и должно рассматриваться в индивидуальном порядке.

В то же время, даже при рассмотрении алгоритмов диагностирования в общем виде, следует принимать во внимание еще один класс функций, которые определим, как *функции безопасности* объекта. При рассмотрении ряда объектов диагностирования можно выделить в них такие элементы структуры, которые не оказывают существенного влияния на выполнение объектом определенных для него рабочих функций. Однако изменение параметров этих элементов может привести к ситуации, когда режим штатного функционирования должен быть остановлен из-за возможных тяжёлых последствий, как для самого объекта, так и для его возможного окружения, в том числе и людей.

Подведем итог и сделаем следующий вывод: в процессе диагностирования должен выполняться контроль параметров структуры не только связанных с рабочими функциями объекта, но и тех параметров структуры, которые связаны с обеспечением безопасности объекта (*функции безопасности*).

4. Построение диагностической модели объекта

Создание диагностической модели объекта направлено на решение следующей задачи [7]: ***установить связь между величинами, непосредственно измеряемыми при диагностировании (параметрами процесса) и косвенно определяемыми структурными параметрами объекта, отнесенными к числу его диагностических признаков.***

При построении диагностической модели исходной является ММ, в которой исключается часть связей между структурными параметрами объекта и параметрами процессов, реализующихся в режимах рабочего и тестового диагностирования. В результате такого преобразования в исходной ММ может уменьшиться количество уравнений. Однако, при этом преобразовании нельзя исключать ни один ДП из установленного для объекта набора. Должны остать-

ся в модели и все непосредственно измеряемые параметры процесса. Переход от ММ к диагностической модели (ДМ) может осуществляться разными способами. Если ММ содержит дифференциальные уравнения, то вначале может выполняться переход от дифференциальных уравнений к алгебраическим путем использования конечно-разностных схем. При этом получается некоторый промежуточный вариант ДМ. В полученном варианте ДМ количество уравнений и количество неизвестных диагностических признаков должно быть одинаковым, иначе невозможно решение задачи идентификации всех ДП.

Желательно, чтобы на этом этапе процесс трансформации ММ в ДМ не завершался. Конечный вариант диагностической модели целесообразно иметь в виде выражений, в которых определены зависимости каждого из диагностических признаков объекта от непосредственно измеряемых параметров процесса и, возможно, других известных величин. К числу таких величин относятся и те структурные параметры объекта, которые не были введены в число его диагностических признаков по разным причинам. После получения указанных соотношений для ДП в явном виде становится возможным не только определять значения диагностических признаков по результатам непосредственных измерений, но и получать оценки для погрешностей этих значений. Величины значений погрешностей диагностических признаков зависят от неопределенностей (погрешностей) непосредственных измерений, а также от ряда других факторов, определяемых в каждом конкретном случае отдельно.

При проведении диагностирования какая-то часть ДП может определяться путем непосредственных (прямых) измерений. Тогда они вместе с остальными измеряемыми величинами будут входить в диагностическую модель объекта для идентификации оставшихся неизвестных диагностических признаков.

Таким образом, в качестве основного назначения диагностической модели является установление связи в виде полученной аналитической зависимости между неизвестными диагностическими признаками в ММ и непосредственно измеряемыми в диагностическом процессе величинами. Она также используется для оценок неопределенностей этих ДП.

Построение диагностической модели относится к *первому этапу* методологии диагностирования, созданной для разработки алгоритмов диагностирования широкого класса технических объектов разного назначения [8]. Этот этап называется «Математическое моделирование».

Первый этап выполняется до начала эксплуатации объекта диагностирования и предполагает выполнение следующей последовательности действий:

1. Выбор вида модели объекта на определенном уровне детализации и его обоснование для дальнейшего построения связей между функциями работоспособности объекта и теми макропараметрами структуры, изменение которых в наибольшей степени влияет на его работоспособность. Под макропараметрами будем понимать параметры укрупненных частей объекта, получившихся в результате упрощения его структурной схемы.

2. Определение набора параметров и характеристик структуры объекта, наиболее значимых для его работоспособности, путем проведения вариантных расчетов по построенной ММ.

2.1. Определение набора параметров и характеристик объекта, отнесенных к числу его диагностических признаков (ДП);

2.2. Оценка границ областей и диапазонов значений ДП, допустимых для работоспособного состояния объекта.

3. Оценка доступной в диагностическом режиме измерительной информации.

3.1. Определение набора непосредственно измеряемых величин (НИВ), получаемых в процессе диагностирования;

3.2. Оценка неопределенностей непосредственных измерений.

4. Построение диагностической модели (ДМ) объекта.

4.1. Получение аналитических зависимостей между НИВ и диагностическими признаками;

4.2. Рассмотрение возможностей для определения полного набора диагностических признаков объекта и создание для целей идентификации расчетной программы;

4.3. В случае положительного решения по п. 4.2. проводится оценка неопределенностей косвенно определяемых по диагностической модели ДП и переход на п. 5;

4.4. В случае отрицательного решения по п. 4.2. переход на начало процедуры построения ММ в п.1.

5. Оценка информативности набора непосредственно измеряемых величин.

5.1. Варьирование величинами математического ожидания и неопределенностей в исходном наборе НИВ;

5.2. Получение значений математического ожидания и неопределенности ДП;

5.3. Получение значений коэффициентов информативности для данного набора НИВ;

5.4. Переход на новый набор НИВ и повторение п. 5.1–5.3.

6. Рекомендации по выбору набора НИВ с целью получения наиболее информативного набора контрольных точек.

На рис. 1 представлены отдельные блоки и существующие связи при реализации первого этапа.

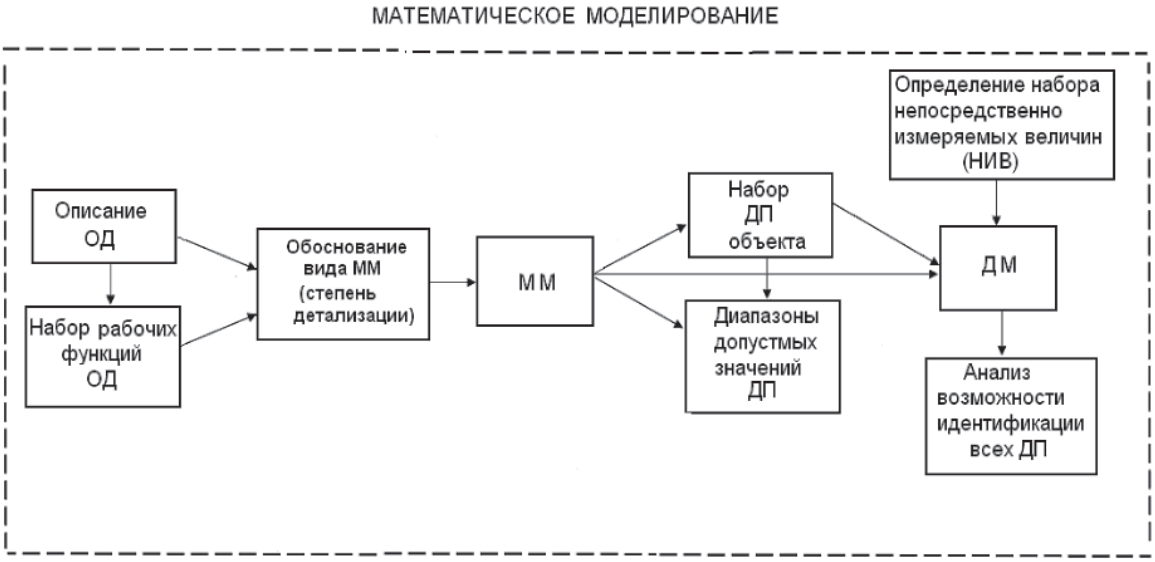


Рис. 1. Первый этап методологии диагностирования – «Математическое моделирование»

Второй этап методологии диагностирования выполняется после начала эксплуатации контролируемого объекта и проводится каждый раз, когда проводятся диагностические измерения. На этом этапе собирается и обрабатывается измерительная информация, полученная с помощью технических средств диагностирования. Данный этап называется «Процедура диагностирования».

Процедура диагностирования, помимо получения результатов измерений, состоит в проведении расчетов для оценки технического состояния объекта по программе, в которой реа-

лизована ранее полученная диагностическая модель и введена измерительная информация. Результатом работы на данном этапе является получение заключения о нахождении объекта в одном из возможных технических состояний, а также оценка запаса работоспособности на момент проведения диагностических измерений. Для этого необходимо выполнить следующие действия:

1. Получить возможный объём информации по НИВ.
2. Оценить неопределенности (погрешности) экспериментальной информации (неопределенности НИВ) [9].
3. Выполнить идентификацию диагностических признаков объекта с использованием его диагностической модели.
4. Оценить полученные неопределенности идентификации для данного набора ДП.
5. Выполнить оценку информативности для данного набора НИВ [10].

Поставить диагноз о техническом состоянии контролируемого объекта на момент проведения данного этапа.

На рис. 2 представлены отдельные блоки и существующие связи при реализации этапа «Процедура диагностирования».

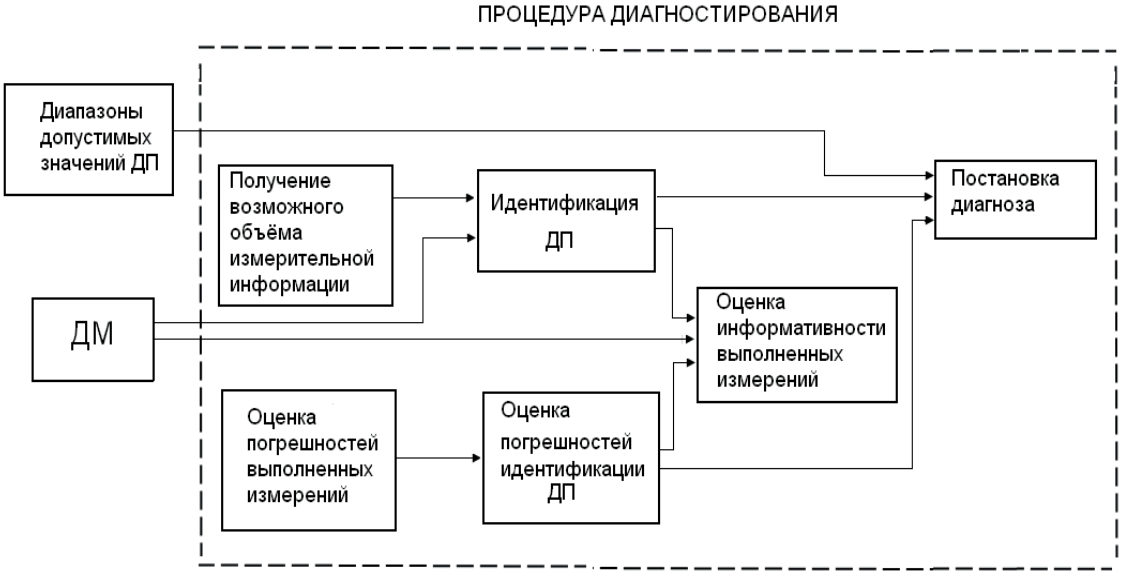


Рис. 2. Второй этап – «Процедура диагностирования»

Реализация второго этапа завершает решение задачи контроля технического состояния объекта (КТС) после чего может быть выполнен переход к следующим задачам технической диагностики: поиску дефекта [11–12], если по результатам КТС объект признан неработоспособным или утратившим значительную часть работоспособности или прогнозированию остаточного ресурса, если по результатам КТС объект признан работоспособным. Эти задачи решаются по известным методам и в данной работе далее не рассматриваются.

5. Выбор режима и метода диагностирования технического состояния объекта

Под *методом диагностирования* понимаются приемы и способы, использование которых позволяет оценить техническое состояние объекта для момента времени проведения диагностических измерений. Такое определение подходит для методов решения только одной (первой) задачи технической диагностики – КТС. Для второй задачи – поиска дефектов считается,

что техническое состояние объекта уже определено как неработоспособное. Для этой ситуации методы диагностирования должны быть направлены на поиск элемента, вызвавшего конкретный дефект в виде отказа или резкой потери запаса работоспособности.

Следующим шагом при выборе метода диагностирования является определение *режима функционирования объекта* при проведении процедуры диагностирования. Таких режимов может быть несколько: рабочий, тестовый, смешанный. После этого метод и режим диагностирования связываются в единую композицию и рассматривается вопрос формирования состава требуемых технических средств диагностирования (ТСД).

В режиме ***рабочего диагностирования*** на вход объекта поступают (и контролируются) *нормальные рабочие воздействия*, а сам объект функционирует в *нормальных* условиях, которые определяются технической документацией.

В методах ***диагностирования в тестовом режиме***, объект должен быть отключен от источников штатных воздействий и на его вход (входы) подаются тестовые сигналы от генераторов сигналов специальной формы. Таким образом, снимается вопрос о получении при диагностировании рабочих функций контролируемого объекта. В данном режиме что-то должно заменить рабочие функции. Полагаем, что в качестве такой замены могут выступать параметры каких-то процессов, зависящих от изменений в структурных параметрах объекта. В результате мы приходим к категории функций, которые в общем случае, являются производными от параметров процесса в данном (тестовом) режиме диагностирования. Они могут быть определены как *функции контроля*.

Если рассматривать рабочее функционирование как частный случай режима тестового диагностирования, то можно определить *общие принципы диагностирования*, в которых в качестве *основных* измеряемых величин рассматриваются эти *функции контроля*.

К числу методов тестового диагностирования относится, в частности, *метод эквивалентной модели*. В этом методе сравниваются реакции диагностируемого объекта и его эквивалентной модели. Диагностическая модель представляется в виде физического объекта или в виде эквивалентной ММ, адекватно представляющей процессы в разных режимах функционирования объекта. При диагностировании на вход эквивалентной модели подается такое же воздействие, как и на вход основного объекта, которое представляет некоторую временную функцию. По результату сравнения выходных реакций объекта и модели ставится диагноз о состоянии работоспособности объекта.

Основное преимущество метода эквивалентной модели состоит в получении возможности выполнения отработки на модели ряда дефектов объекта без нанесения ему ущерба. В ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» метод эквивалентной модели в варианте, представленном в работе [13], был реализован в Калибраторе реактивности.

Отметим, что в тестовом режиме диагностирования сам процесс функционирования диагностируемого объекта имеет второстепенное значение. Однако не на всех объектах существует реальная возможность остановки контролируемого объекта для проведения тестовых диагностических измерений. Как правило, такие остановки прерывают возможность объекта наработать запланированный объём продукции в течение определенного временного интервала. В ряде случаев сам процесс остановки объекта для проведения подобных измерений либо очень затруднен, либо просто невозможен. В качестве примера можно привести ситуацию, когда производится остановка ядерного реактора энергоблока АЭС для проведения диагностических измерений на отдельных системах станции или остановка металлургического производства для диагностирования отдельных его блоков. Но в некоторых случаях вообще невозможно полностью диагностировать объект или его части,

если объект выведен из рабочего состояния. Дело в том, что при работе ряда объектов создаются такие внешние и внутренние факторы (например, температурные поля или уровни ионизирующего излучения), которые сложно воспроизвести тестовыми воздействиями. В то же время в тестовом режиме диагностирования может быть получен более значительный объём диагностической информации по сравнению с объёмом, получаемым при рабочем функционировании объекта.

Следует также отметить, что, зная принципы функционирования объекта диагностирования в основных и дополнительных режимах, необходимо не допускать возникновения аварийных ситуаций при диагностировании объекта в основных и дополнительных режимах. Под основными режимами будем понимать возможные рабочие режимы. К дополнительным режимам будем относить те режимы, которые связаны с нештатным функционированием объекта, в том числе и при подаче на него тестовых воздействий.

В ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» был разработан и запатентован для диагностирования токовых ионизационных камер системы управления и защиты (СУЗ) ядерного реактора новый, отличный от ранее известных, вид (режим) диагностирования [14–15]. Этот режим представляет синтез рабочего и тестового диагностирования, и назван как *смешанный* (комбинированный) *режим диагностирования* технических объектов. На основе данного изобретения была создана и опробована на ионизационной камере КНК-15 мобильная система диагностирования [16–19]. При смешанном режиме функционирования объекта выполняются все заданные рабочие функции, но объект работает в нештатном режиме. Описание и работа мобильной системы диагностирования приведены в [20].

На рис. 3 представлен типовой вариант структурной схемы системы смешанного диагностирования, т.е. измененный вариант одной из реализованных на практике систем тестового диагностирования.

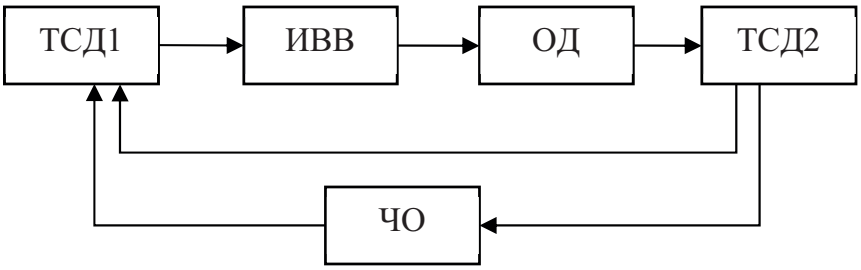


Рис. 3. Структурная схема системы смешанного диагностирования:

ИВВ – источник входных воздействий (рабочий блок питания) представляет собой генератор рабочих сигналов, которые вместе с тестовыми сигналами подаются на объект диагностирования (ОД);

ТСД – технические средства диагностирования;

ЧО – человек-оператор.

6. Оценка информативности диагностических измерений и прогнозирование остаточного ресурса

При проведении диагностирования используются измерительные приборы, а также информационно-измерительные системы, выдающие результаты измерений с определённой погрешностью (неопределённостью). При переходе с помощью диагностических моделей от непосредственно измеряемых величин к контролируемым параметрам и ДП к погрешности результатов непосредственных измерений добавится компонента погрешности для значений

контролируемых параметров или ДП, связанная с указанным переходом. Величина итоговой погрешности приобретает особое значение при приближении ДП к установленным предельным значениям, поскольку в зависимости от её величины по контролируемому параметру может быть поставлен тот или иной диагноз.

Для того, чтобы разобраться с величиной получаемой итоговой погрешности идентифицируемого ДП нужно учитывать погрешность измерения определяемой при диагностировании величины и трансформацию этой погрешности при переходе к конкретному ДП объекта по его диагностической модели. Если для определения одного и того же ДП могут быть использованы измерения разных величин, позволяющих определить техническое состояние объекта, то, с учетом сказанного, будут получаться разные итоговые погрешности (неопределенности) в процедуре оценки данного диагностического признака. В итоге мы приходим к выводу, что из перечисленных возможных прямых измерений какого-то набора величин, измерение одной величины позволяет получить данный ДП с минимальной неопределенностью.

Таким образом, возникает необходимость во введении того или иного численного критерия для оценки степени полезности данного измерения для повышения вероятности правильной постановки диагноза о том или ином техническом состоянии объекта безотносительно к тому, какое это состояние (например, при выборе из двух возможных: работоспособное, неработоспособное). Для этого вводится понятие *информативности* конкретного измерения при его использовании для идентификации конкретного ДП на основе полученной диагностической модели объекта [21].

Информативность отдельного измерения для целей диагностирования объекта определяется как величина, определяющая вероятность правильной постановки диагноза о техническом состоянии объекта по диагностическому признаку, определенному по данному измерению.

В качестве количественной оценки информативности измерения в работе [10] предлагается использовать *коэффициент информативности*, изменяющийся, так же, как и величина вероятности, в пределах от 0 до 1. Отличие этого коэффициента от вероятности конкретного события состоит в том, что он не привязан к оценке вероятности того или иного исхода при диагнозе технического состояния объекта. Практическая ценность во введении *коэффициента информативности* обусловлена возможностью выбора на этапе проектирования объекта контрольных точек для подключения измерительной аппаратуры на этапе эксплуатации этого же объекта с целью определения диагностических признаков с меньшей неопределенностью, а также постановки диагноза о состоянии объекта по этому признаку с большей вероятностью.

На основе проведенного анализа возможных ситуаций в работе [20] предложено следующее заключение:

1. Вероятность правильного заключения о техническом состоянии объекта в ряде случаев определяется не точностью проводимых измерений, а соотношением между границами двух интервалов:

- интервала работоспособного состояния объекта;
- интервальной оценки погрешности измеренной величины (интервал, в котором с заданной вероятностью находится истинное значение измеренной величины).

2. Об информативности того или иного диагностического измерения можно судить по величине коэффициента информативности I_i, определяемого, например, по формуле (2) [10]:

$$I_i = \frac{A_i \left| P_{1i} - \frac{1}{2} \right|}{\left| P_1^0 - \frac{1}{2} \right| + 1} = \frac{A_i \left| P_{2i} - \frac{1}{2} \right|}{\left| P_2^0 - \frac{1}{2} \right| + 1}, \qquad (2)$$

где

P_1^0, P_2^0 – априорные вероятности нахождения объекта в технически исправном и неисправном состояниях;

P_{1i}, P_{2i} – апостериорные вероятности нахождения объекта в технически исправном и неисправном состояниях по результатам i-го измерения;

A_i – нормировочный коэффициент, который переводит величину информативности i-го диагностического измерения в интервал значений $0 \le I_i \le 1$.

Величиной, определяющей значение коэффициента информативности I_i в формуле (2), является степень отклонения вероятности нахождения в работоспособном состоянии или вероятности для альтернативного состояния от 0.5 при наличии двух возможных гипотез о техническом состоянии.

Возможны и другие соотношения для оценки величины информативности I_i. Так можно изменить нормировочный коэффициент A_i, введя дополнительную информацию о соотношениях между длинами интервалов значений i-го диагностического параметра, допустимых для работоспособного (технически исправного) состояния и интервала неопределенности для этого параметра по результатам того или иного диагностического измерения или между границами указанных интервалов.

3. При построении соотношений для оценки информативности того или иного диагностического измерения существенным моментом следует считать рассмотрение максимальной величины погрешности измерения на основе того или иного закона распределения вероятности случайной величины. Это особенно важно в ситуации, когда значение измеренной величины приближается к границам интервала значений параметра, допустимых для исправного состояния элемента или объекта. Тогда повышается вероятность появления ошибок первого и второго рода.

Величина информативности диагностического измерения оценивается по значению коэффициента информативности, который вычисляется, например, по формуле (2) и изменяется в некотором диапазоне положительных значений (0; 1). Как отмечалось выше, коэффициент A_i в формуле (2) – это некоторый нормировочный коэффициент.

Формулу (2) можно модифицировать для решения задачи прогнозирования остаточного ресурса контролируемого объекта. При этом для определения величины информативности (коэффициента информативности) измерений вместо формулы (2) предлагается использовать формулу (3) [20]:

$$I_i = \frac{A_p A_i \cdot \left| P_{1i} - \frac{1}{2} \right|}{\left| P_1^0 - \frac{1}{2} \right| + 1}, \qquad (3)$$

в которой A_p – коэффициент прогноза, рассчитывается по формуле:

$$A_p = 1 - \frac{b_0}{\Delta}\left|R - R^н\right| \ , \qquad (4)$$

где

Δ – один из двух возможных допусков на значение контролируемого параметра (верхний допуск Δ^+, нижний допуск Δ^-);

$R^н$ – номинальное значение, задаваемое для измеряемого параметра R;

b_0 – коэффициент, задаваемый в пределах $0.5 \le b_0 < 1$, и характеризующий степень приближения объекта к предельному состоянию.

7. Проблемы оценки неопределенности прямых и косвенных измерений

При обработке результатов измерений возникают проблемы, связанные с оценкой погрешностей результатов прямых и косвенных измерений. В случае косвенных измерений [24], к погрешности результата прямых измерений может добавляться погрешность, связанная с функциональной зависимостью между непосредственно измеряемой величиной и косвенно определяемым диагностическим признаком объекта.

Отметим, что при проведении прямых измерений диагностических признаков, а также других физических величин, необходимых для косвенного определения ДП по разработанной диагностической модели, возникают вопросы, на которые нет однозначного ответа в актуализированной нормативной документации [22–24], такие как:

- как оценивать доверительные границы случайной компоненты погрешности при небольшом количестве повторных измерений и отсутствии информации о законе распределения случайной величины;
- как суммировать не исключенные составляющие систематической погрешности с учетом возможно разных знаков у отдельных составляющих и насколько корректно приписывать им равномерный закон распределения случайной величины в симметричных пределах;
- как получать величины полной погрешности (неопределенности) как прямых, так и косвенных измерений.

Для решения практических вопросов обработки результатов измерений следует обратить внимание на работы [25, 26]. При оценке погрешности (неопределенности) прямых и косвенных измерений возникает также и ряд других проблем, для решения которых приходится расширять интервал неопределенности, в котором с заданной доверительной вероятностью находится истинное значение измеряемой величины, что приводит к понижению точности диагноза при приближении контролируемого объекта к предельному состоянию.

Заключение

Разработка алгоритмов диагностирования *непрерывных* технических объектов, имеющих в отличие от *дискретных* объектов бесконечное множество состояний, по представленной в статье методологии может быть выполнена для широкого класса технических объектов различного назначения. Основная цель такой методологии состоит в разработке диагностической модели контролируемого объекта, позволяющей не только выполнить идентификацию ряда структурных параметров объекта из числа его диагностических признаков, но и оценить погрешности (неопределенности) полученных значений этих параметров.

Создание системы диагностирования для нового объекта должно начинаться уже на этапе проектирования этого объекта как потенциального объекта контроля. Это создаёт возможность получения наиболее информативных для контроля технического состояния измерительных каналов и для повышения точности поставленного диагноза для целей безопасной эксплуатации данного объекта и оценки его остаточного ресурса.

Для современных объектов атомной энергетики, включающих ядерные энергетические установки различного назначения, использование методологии разработки алгоритмов диагностирования, представленной в статье, позволяет реализовать концепцию концерна «Росэнергоатом» «о переходе с технического обслуживания и ремонта по регламенту на техническое обслуживание и ремонт по техническому состоянию».

Литература

1. ГОСТ 20911–89. Техническая диагностика. Термины и определения. – М.: Изд-во стандартов, 1990.
2. *Северцев Н.А.* Введение в безопасность: учебное пособие / Н.А. Северцев, А.В. Бецков. – Москва, 2018.
3. *Калявин В.П.* Надёжность и техническая диагностика судового электрооборудования и автоматики: учебник / В.П. Калявин, А.В. Мозгалевский, В.Л. Галка. – СПб.: Элмор, 1996.
4. *Панкин А. М.* Диагностирование электрических цепей при неизвестной топологии схемы // Надёжность и качество: тр. междунар. симпоз.; Пенза 27.05-2.06.2002. – Пенза, 2002. – С. 425–427.
5. *Калявин В.П.* Основы теории надёжности и технической диагностики элементов и систем ЯЭУ: учеб. пособие / В.П. Калявин, А.М. Панкин. – СПб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2007. – 213 с.
6. *Панкин А.М.* Некоторые вопросы методологии диагностирования непрерывных технических объектов // Надёжность и качество: тр. междунар. симпоз.; Пенза 24.05-31.05.2010. – Пенза, 2010. – Т.1. – С. 42–48.
7. *Панкин А.М.* Разработка теории и методов контроля технического состояния изделий и систем атомной энергетики: автореферат дисс. …д.т.н. – СПб: СПбГЭТУ («ЛЭТИ») им. В.И. Ульянова (Ленина), 2019.
8. *Лебедев О.В.* Диагностическое моделирование ГЦН ядерного реактора ВВЭР / О.В. Лебедев, А.М. Панкин, К.В. Батанин // Надёжность и качество: тр. междунар. симпоз.; Пенза 23.05-31.05.2011. – Пенза : Изд-во Пенз. ГУ, 2011. – Т.1. – С. 57–58.
9. *Панкин А.М.* Определение погрешностей при проведении диагностических измерений в электрических цепях // Надёжность и качество: тр. междунар. симпоз.; Пенза 24.05-31.05.2004. – Пенза, 2004. – Ч .2.
10. *Панкин А.М.* Информативность измерений в задачах диагностирования электрических цепей // Системные проблемы качества, математического моделирования и информационных, электронных и лазерных технологий: материалы междунар. конф.; Сочи 1-10.10.2001. – М., 2001. – Ч. 2. – С.46–47.
11. *Василенко В.А.* Система индикации дефектов в трубах на основе метода вихревых токов / В.А. Василенко, А.М. Панкин, С.Я. Травин // Системные проблемы качества, математического моделирования и информационных, электронных и лазерных тех-

нологий: материалы междунар. конф.; Сочи 1-12.10.2002. – М.: Радио и связь, 2002. – Ч. 2. – С. 145.

12. *Панкин А.М.* Контроль и прогнозирование технического состояния труб методом электромагнитной индукции / А.М. Панкин, С.Я. Травин // Надёжность и качество: тр. междунар. симпоз.; Пенза 26.05-1.06.2003. – Пенза, 2003. – С. 303–305.
13. *Василенко В.А.* Калибратор реактивности / В.А. Василенко, А.М. Панкин, К.В. Скворцов // Атомная энергия. – 2018. – Т. 125, вып. 3. – С. 141–145.
14. Использование динамических процессов для целей диагностики ионизационной камеры нейтронно-физического канала СУЗ ядерного реактора / А.М. Панкин, В.П. Даниленко, А.В. Ельшин, С.А. Башарин // Системные проблемы качества, математического моделирования и информационных, электронных и лазерных технологий: материалы междунар. конф.; Сочи 15–24.09.1998. – М., 1998. – Ч. 3. – С. 76–79.
15. Пат. РФ № 2145427. Способ рабочего диагностирования ионизационной камеры системы управления и защиты ядерного реактора / А.М. Панкин, С.А. Башарин, В.П. Даниленко, В.Ф. Борисов // Изобретения и полезные модели: бюл. – 2020. – № 4.
16. *Панкин А.М.* Малогабаритные диагностические системы для оперативного контроля объектов ядерной энергетики / А.М. Панкин, О.Ю. Пыхтеев // Надёжность и качество: тр. междунар. симпоз.; Пенза 23.05-31.05.2005. – Пенза, 2005. – С. 354–355.
17. *Панкин А.М.* Малогабаритная автономная система диагностики и идентификации параметров электрических схем / А.М. Панкин, Е.В. Аккуратов // Надёжность и качество: тр. междунар. симпоз.; Пенза 22.05-31.05.2006. – Пенза, 2006. – Т.2. – С. 34–36.
18. *Еперин А.П.* Методы диагностирования токовых ионизационных камер / А.П. Еперин, А.М. Панкин. – М.: ВНИИА, 2007. – Вып. 1(24). – С. 52–59.
19. *Еперин А.П.* Алгоритм идентификации параметров и система диагностирования ионизационных камер / А.П. Еперин, А.М. Панкин. – М.: ВНИИА, 2007. – Вып. 1(24). – С. 60–67.
20. *Панкин А.М.* Разработка теории и методов контроля технического состояния изделий и систем атомной энергетики: диссертация на соискание ученой степени доктора техн. наук. – СПб, 2019.
21. *Панкин А.М.* Анализ информативности измерений в задачах диагностирования электрических цепей с помощью метода узловых сопротивлений // Надёжность и качество: тр. междунар. симпоз.; Пенза 21-31.05.2001. – Пенза, 2001. – С. 303–305.
22. ГОСТ Р 8.736-2011. Измерения прямые многократные. Методы обработки результатов измерений. Основные положения.
23. Р 50.2.038-2004 ГСИ. Измерения прямые однократные. Оценивание погрешностей и неопределённости результата измерений.
24. МИ 2083-90 ГСИ. Измерения косвенные. Определение результатов измерений и оценивание их погрешностей.
25. *Тойберт П.* Оценка точности результатов измерений / П. Тойберт. – М.: Энергоатомиздат, 1988. – 89 с.
26. *Тэйлор Дж.* Введение в теорию ошибок / Дж. Тэйлор. – М.: Мир, 1985. – 272 с.

УДК 544.344.9; 621.039.586 DOI:10.52069/2414-5726_2021_4_26_53

Экспериментальное определение точки пространственной инверсии сосуществующих фаз расплава в системе U-Zr-Fe-O-B_4C

В.Б. Хабенский [1], В.И. Альмяшев [1, 2, 3], А.В. Тимчук [1], Е.Б. Шуваева [1], Е.В. Крушинов [1], С.А. Витоль [1], А.А. Сулацкий [1], С.Ю. Котова [1], В.В. Гусаров [4]

[1] ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской обл., Россия

[2] ФГАОУ ВО «Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет им. В.И. Ульянова (Ленина) «ЛЭТИ», Санкт-Петербург, Россия

[3] ФГБУН «Институт химии силикатов им. И.В. Гребенщикова РАН», Санкт-Петербург, Россия

[4] ФГБУН «Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН», Санкт-Петербург, Россия

Аннотация

В работе исследована стадия тяжелой аварии, связанная с формированием ванны расплава и изменением пространственного расположения двух несмешивающихся жидких фаз (металлической и оксидной) в базовой для тяжелой аварии на АЭС системе U-Zr-Fe-O-B_4C. В эксперименте исходным состоянием являлась двухжидкостная оксидно-металлическая субокисленная ванна расплава кориума с нижним положением металлической жидкости и соотношением U/Zr, характерным для условий аварии на АЭС Фукусима-Дайичи. В процессе эксперимента в системе U-Zr-Fe-O-B_4C последовательно малыми порциями увеличивалась массовая доля B_4C и определялась точка пространственной инверсии металлической и оксидной жидкости, при которой металлическая жидкость занимала устойчивое верхнее положение в ванне расплава. В эксперименте также были проведены измерения температуры монотектики при изменении содержания B_4C в расплаве, определялся состав проб расплава и продуктов плавки. Полученные экспериментальные результаты могут быть использованы для расширения и уточнения баз данных, используемых для термодинамического моделирования фазовых равновесий в многокомпонентных системах расплава кориума на различных стадиях тяжелой аварии на АЭС с водо-водяными реакторами.

Ключевые слова: уран, цирконий, железо, кислород, карбид бора, фазовые равновесия, жидкофазное расслаивание, пространственная инверсия жидких фаз, индукционная плавка в холодном тигле (ИПХТ), тяжелые аварии.

Experimental determination of spatial inversion point of coexisting molten phases in the U-Zr-Fe-O-B_4C system

V.B. Khabensky [1], V.I. Almjashev [1, 2, 3], A.V. Timchuk [1], E.B. Shuvaeva [1], E.V. Krushinov [1], S.A. Vitol [1], A.A. Sulatsky [1], S.Yu. Kotova [1], V.V. Gusarov [4]

[1] FSUE “Alexandrov NITI”, Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia

[2] Saint Petersburg Electrotechnical University “LETI”, Saint Petersburg, Russia

[3] I.V. Grebenshchikov Institute of Silicate Chemistry of RAS, Saint Petersburg, Russia

[4] Ioffe Institute, Saint Petersburg, Russia

Abstract

The work studies the stage of a severe accident associated with the formation of a molten pool and a change in the spatial arrangement of two immiscible liquid phases (metallic and oxidic)

in the U-Zr-Fe-O-B_4C system, which is the base system for a severe accident at a nuclear power plant. In the experiment, the initial state was a two-liquid oxidic-metallic suboxidized molten pool of corium with a bottom position of metallic liquid and a U/Zr ratio typical of the accident conditions at the Fukushima-Daiichi NPP. During the experiment, in the U-Zr-Fe-O-B_4C system, the mass fraction of B_4C was successively increased in small portions, and the point of spatial inversion of the metallic and oxidic liquid was determined, at which the metallic liquid occupied a stable upper position in the molten pool. In the experiment, the monotectic temperature was also measured with a change in the B_4C content in the melt, and the composition of the melt samples and melt products was determined. The obtained experimental results can be used to expand and refine the databases used for thermodynamic modeling of phase equilibria in multicomponent systems of molten corium at various stages of a severe accident at NPPs with pressurized and boiling water reactors.

Key words: uranium, zirconium, iron, oxygen, boron carbide, phase equilibria, miscibility gap, spatial inversion of liquid phases, induction melting in the cold crucible (IMCC), severe accidents.

Введение

Международный проект Агентства по ядерной энергии Организации экономического сотрудничества и развития (АЯЭ/ОЭСР) TCOFF (Термодинамическое описание топливных осколков и продуктов деления на основе анализа сценария развития тяжелой аварии на АЭС Фукусима-Дайичи, Thermodynamic Characterization Of Fuel debris and Fission products based on scenario analysis of severe accident progression at the Fukushima Daiichi nuclear power station) направлен на расширение баз данных, применяемых для термодинамического моделирования фазовых равновесий в многокомпонентных системах на разных стадиях тяжелой аварии, в частности, на аварии, произошедшей на АЭС Фукусима-Дайичи. Проект TCOFF инициирован японской стороной и в нем приняли участие 20 организаций из 10 стран [1]. В рамках проекта TCOFF был проведен конкурс международных заявок, позволивший реализовать серию экспериментов, в частности, эксперимент в системе U-Zr-Fe-O-B_4C, ориентированный на определение точки пространственной инверсии сосуществующих в кориумной системе жидких фаз.

Система U-Zr-Fe-O-B_4C является базовой для активной зоны водо-водяных энергетических ядерных установок, использующих твэлы на основе топлива из диоксида урана в циркониевых оболочках, основной компонент материала корпуса реактора и внутрикорпусных конструкций – железо, а B_4C – материал поглощающих стержней.

При тяжелой аварии с плавлением активной зоны образуется оксидно-металлическая субокисленная ванна расплава кориума, которая в процессе формирования может иметь различную структуру [2–15]. Для локализации расплава кориума при тяжелой аварии в АЭС с легководным реактором наиболее эффективным способом является удержание расплава в корпусе реактора при наружном охлаждении его водой (IVR). При этом основным условием для сохранения целостности корпуса является отсутствие кризиса теплообмена на его наружной охлаждаемой поверхности [2, 3, 7, 8, 11, 12].

Наиболее опасным местом, с точки зрения возникновения кризиса теплообмена, является зона контакта внутренней поверхности корпуса с расположенным на поверхности ванны тонким слоем металлической жидкости, в которой фокусируется тепловой поток, передаваемый от оксидной жидкости к металлической [2, 3, 7, 8, 11, 12, 16, 17]. Величина подводимого от металлического слоя расплава к корпусу реактора теплового потока при прочих равных условиях непосредственно зависит от температуры металлического расплава, теплофизических свойств и толщины металлического слоя, которые, в свою очередь, зависят от сценария тяжелой аварии, уровня остаточного энерговыделения, физико-химических процессов, протекающих в расплаве, термодинамических характеристик системы и трансформации структуры ванны в

процессе ее формирования. Влияние трансформации структуры оксидно-металлической ванны расплава в процессе ее формирования на фокусирующий тепловой поток от металлического расплава к стенке корпуса реактора достаточно подробно рассмотрено в [18].

Экспериментальные исследования, выполненные в рамках проектов АЯЭ/ОЭСР MASCA [19] и МНТЦ EPICOR [20], продемонстрировали, что для системы U-Zr-Fe(Cr,Ni)-O-B-C субокисленного двухжидкостного оксидно-металлического расплава с нижним положением металлической жидкости добавление небольшой доли материала регулирующих стержней (B_4C) оказывает существенное влияние на структуру ванны расплава, приводя к пространственной инверсии металлической и оксидной жидких фаз без добавления расплава стали.

Механизм влияния карбида бора состоит в следующем. Перераспределение U из оксидного в металлический расплав определяется наличием свободного Zr в начальном субокисленном расплаве оксидов. Переход U в металлический расплав является результатом восстановления части UO_2 свободным Zr. При наличии карбида бора в системе бор взаимодействует с Zr и в связанном с B виде переходит в металлический расплав, уменьшая его плотность как за счет увеличения доли существенно менее плотной компоненты, так и за счет уменьшения доли восстановленного урана в металлическом расплаве.

Таким образом, при наличии B_4C в системе, пространственная инверсия металлической и оксидной частей расплава происходит при меньшей массовой доле металла в ванне расплава.

Воздействие пространственной инверсии на фокусирующий эффект для системы U-Zr-Fe-O-B-C полностью соответствует приведенному описанию в [18] фокусирующего эффекта для системы U-Zr-Fe-O.

Учитывая существенное влияние на фокусирующий эффект, изменение структуры ванны расплава, связанное с пространственной инверсией металлической и оксидной фаз расплава и температуры монотектики, требуется надежное экспериментальное определение параметров, необходимых для разработки расчетных моделей и обоснования внутрикорпусного удержания расплава активной зоны ядерных реакторов водо-водяного типа, чему и посвящено данное исследование.

1. Экспериментальные исследования

Исследования выполняли на установке «Расплав-3» комплекса экспериментальных установок «Расплав» в ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» [21], созданном с использованием технологии индукционной плавки в холодном тигле (ИПХТ) [22–24]. Схема установки «Расплав-3» и подробное описание постановки экспериментальных исследований приведены в [18]. Отметим только, что установка «Расплав-3» имеет в своем составе устройство перемещения тигля относительно индуктора, позволяющее регулировать мощность, вводимую в расплав и исключать влияние сил Лоренца в верхней части ванны с металлическим расплавом при выводе верхней части тигля из поля индуктора, что крайне важно для исследования момента наступления пространственной инверсии жидких фаз.

Определение точки инверсии металлической и оксидной фаз расплава и температуры монотектики при добавлении карбида бора в оксидно-металлический двухфазный расплав на основе системы U-Zr-Fe-O проводилось в эксперименте PET-05, в котором была реализована следующая спецификация исходного состояния:

- состав загрузки, масс. %: 67.61 UO_2, 12.89 ZrO_2, 9.50 Zr, 10.00 Fe;
- масса загрузки – 2000 г;
- атомное соотношение U/Zr = 1.2;
- атмосфера в печи – аргон высокой чистоты.

Эксперимент проводился по следующей процедуре. После загрузки печи шихтой ($UO_2 + ZrO_2 + Zr$) для удаления сорбированного в порошках воздуха и создания инертной атмосферы провели продувку печи аргоном в течение 10 минут с расходом 5 л/мин. Включили ВЧ-нагрев, увеличили расход газа в печь до 10 л/мин и провели наплавление ванны расплава. На 2050 с опустили шахту и произвели измерение глубины ванны расплава с помощью вольфрамового зонда, которая составила 66 мм, а толщина гарнисажа 2 мм. Отобрали пробу расплава #1.

Изменение во времени напряжения (U_a), анодного тока (I_a) генератора и показания пирометра в процессе эксперимента PET-05 представлены на рис. 1.

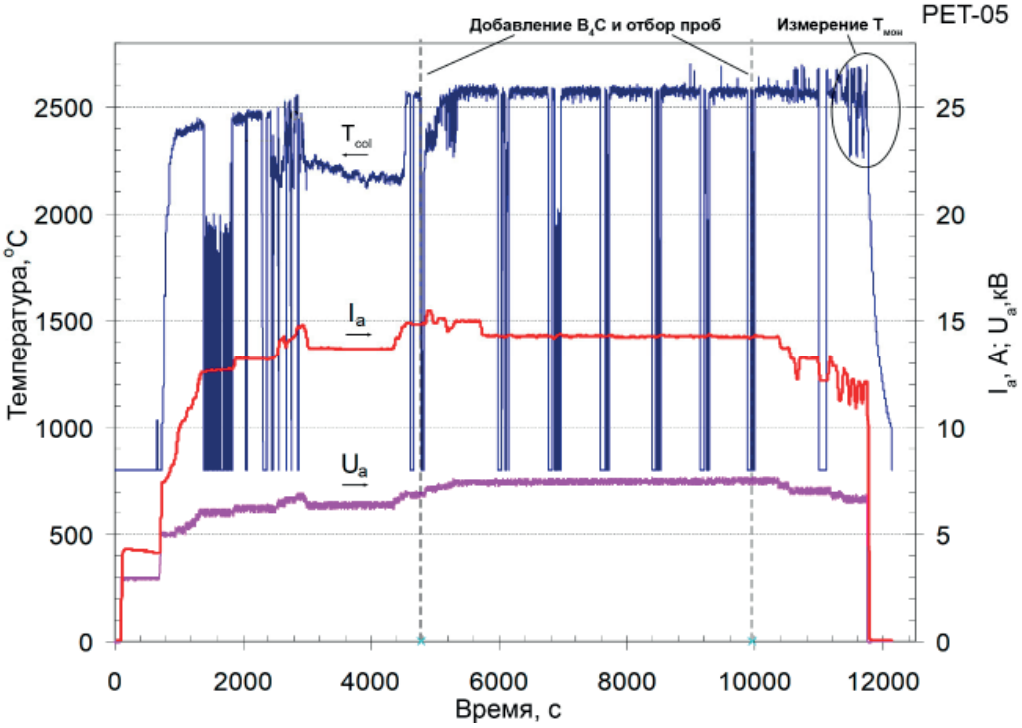


Рис. 1. Изменение во времени напряжения (U_a), анодного тока (I_a), и показаний пирометра (T_{col}) в эксперименте PET-05

С 2449 с по 2860 с ввели через шахту пирометра в сформированный оксидный расплав железо 5 порциями в количестве 200 г. Температура расплава при этом составляла 2530 °C по показаниям пирометра.

Визуально наблюдали пространственную инверсию металлического и оксидного слоев жидкости с перемещением металлического слоя на дно ванны. С 2860 с началась 30 мин гомогенизирующая выдержка оксидно-металлического расплава с отбором на 4607 с пробы из оксидной части расплава #2. Методом визуального политермического анализа определили температуру монотектики оксидно-металлического двухфазного расплава, которая составила 2532 °C. Температура монотектики определялась после каждой введенной в расплав порции железа методом визуального политермического анализа (ВПА ИПХТ) [4].

После выдержки начали ввод малыми порциями B_4C для определения точки обратной инверсии с подъемом расплава металла на поверхность ванны и определения температуры монотектики при поверхностном положении металлической жидкости в оксидно-металлическом расплаве.

На 4775 с ввели первую порцию B_4C в количестве 5 г с последующей 10 мин выдержкой

оксидно-металлического расплава. Перед вводом следующей порции B_4C на 5979 с отобрали пробу #3.

Далее на 6098, 6875, 7679, 8477, 9233, 9953 с порционно вводили B_4C в количествах 2.5, 5, 1.5, 2, 2 и 2 г, соответственно, и после ввода каждой порции проводили 10 мин выдержку и отбор проб #4–8.

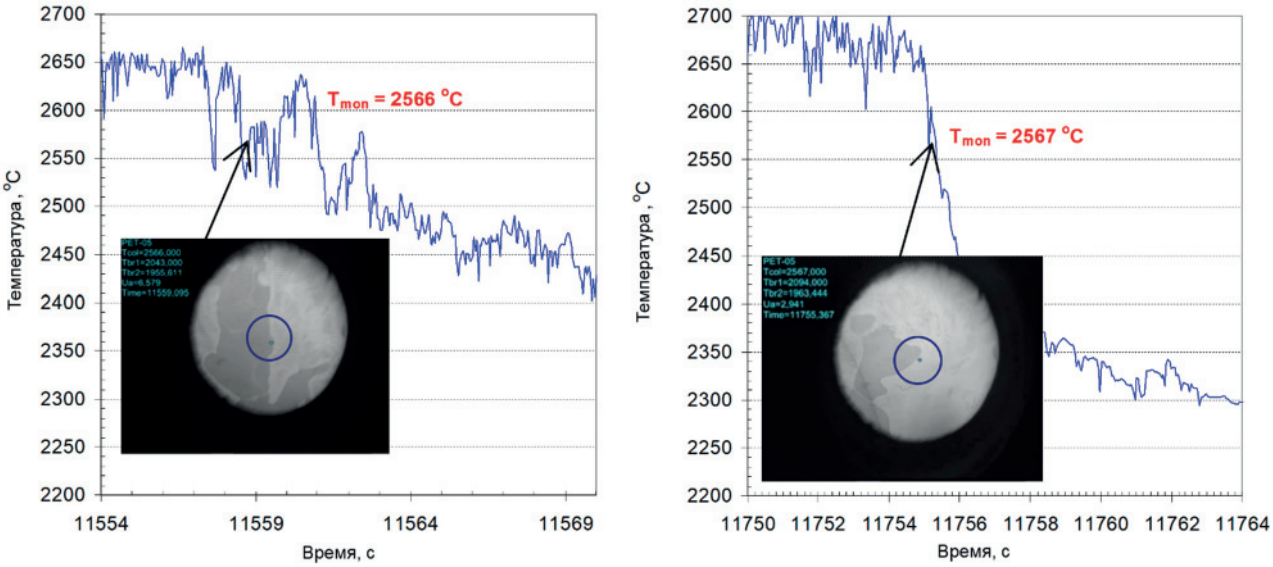
После ввода последней порции B_4C визуально наблюдали появление металлического расплава на поверхности ванны. Для исключения влияния сил Лоренца на положение металлического слоя с 10610 по 10661 с переместили тигль вверх и вывели верхнюю часть из поля индуктора. Зафиксировали устойчивое существование металлического слоя на поверхности оксидно-металлической ванны расплава.

Это позволило сделать вывод, что произошла пространственная инверсия оксидного и металлического слоев. На 11190 с отобрали пробу металлической составляющей расплава #9.

Для определения температуры монотектики в оксидно-металлическом расплаве с верхним положением борсодержащей металлической жидкости с 11437 по 11670 с перемещали тигель относительно индуктора до образования на поверхности металлического расплава оксидных пленок. Для повышения точности таким образом провели четырехкратное измерение температуры монотектики, включая измерение в момент выключения нагрева.

На 11754 с отключили ВЧ-нагрев. Кристаллизацию расплава провели в атмосфере аргона до полного остывания слитка.

На рис. 2 приведены фрагменты термограмм с характерными видеокадрами поверхности расплава в момент измерения температуры монотектики (T_{mon}) после ввода последней порции B_4C в расплав.



а) при захолаживании поверхности ванны

б) в момент отключения нагрева

Рис. 2. Фрагменты термограммы с измерением температуры монотектики в эксперименте PET-05

По результатам четырех измерений температура монотектики в точке инверсии в PET-05 равна T_{mon} = 2564±8 °C. Температура монотектики оксидно-металлического расплава до ввода B_4C составляла T_{mon} = 2532 °C.

При исследовании влияния B_4C на точку инверсии температура поверхности расплава превышала температуру монотектики, т.е. расплав находился в перегретом состоянии. При вводе B_4C до последней порции на поверхности наблюдали расплав оксидов и только после ввода последней порции массой 2 г на поверхности ванны появился расплав металла, устойчивое положение которого подтвердилось при исключении действия сил Лоренца. График увеличения во времени массовой доли B_4C до момента обратной инверсии металлического расплава приведен на рис. 3.

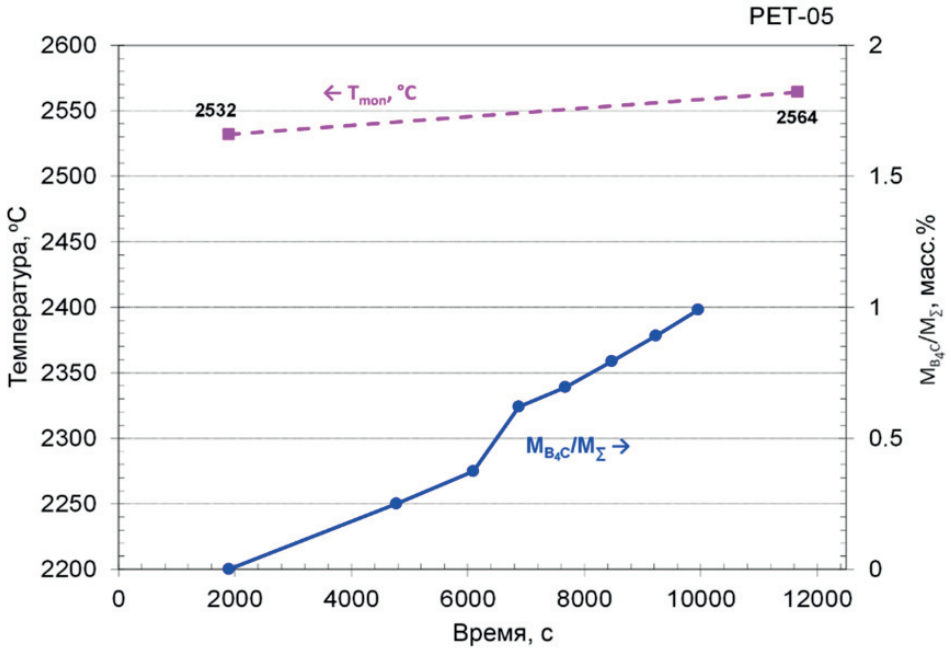


Рис. 3. Изменение температуры монотектики от доли введенного в расплав B_4C (в масс. %) в эксперименте PET-05

Из результатов, приведенных на рис. 3 можно сделать заключение, что даже относительно небольшая доля B_4C в системе (1 масс. %) приводит к перераспределению компонентов между оксидной и металлической фазами расплава, которое определяет уменьшение плотности металлической жидкости и перемещение ее на поверхность ванны.

С целью установления механизма влияния вводимого в расплав B_4C на перераспределение компонентов между оксидной и металлической жидкостями был проведен пост-тестовый анализ слитка.

2. Пост-тестовый анализ PET-05

Для определения состава сосуществующих оксидной и металлической жидкостей ванны расплава, а также для изучения пути кристаллизации системы был проведен подробный физико-химический анализ проб расплава и полученного слитка. Оксидно-металлический слиток извлекли из тигля, залили в эпоксидную смолу и произвели его осевой разрез (рис. 4) для выполнения анализа.

Элементный анализ штанговых проб и характерных зон слитка (места отбора проб указаны на рис. 4) на основе рентгеноспектрального флуоресцентного анализа (РСФА) и химического анализа показали следующие результаты.

Для оксидных проб с #1 до #8, результаты РСФА показали, что с увеличением ввода B_4C в расплав из-за перераспределения компонентов между оксидной и металлической фазами в процессе установления термодинамического равновесия массовый процент содержания U и Zr

в оксидном расплаве плавно меняется, масс. %: 65.6 U, 21.3 Zr для пробы #1 до 67.2 U, 19.8 Zr для пробы #8.

Таким образом, на основании результатов физико-химического анализа можно констатировать, что при добавлении в расплав карбида бора часть урана переходит из металлического расплава в оксидный, а часть циркония, ассоциированная с бором – из оксидной фазы переходит в металлическую.

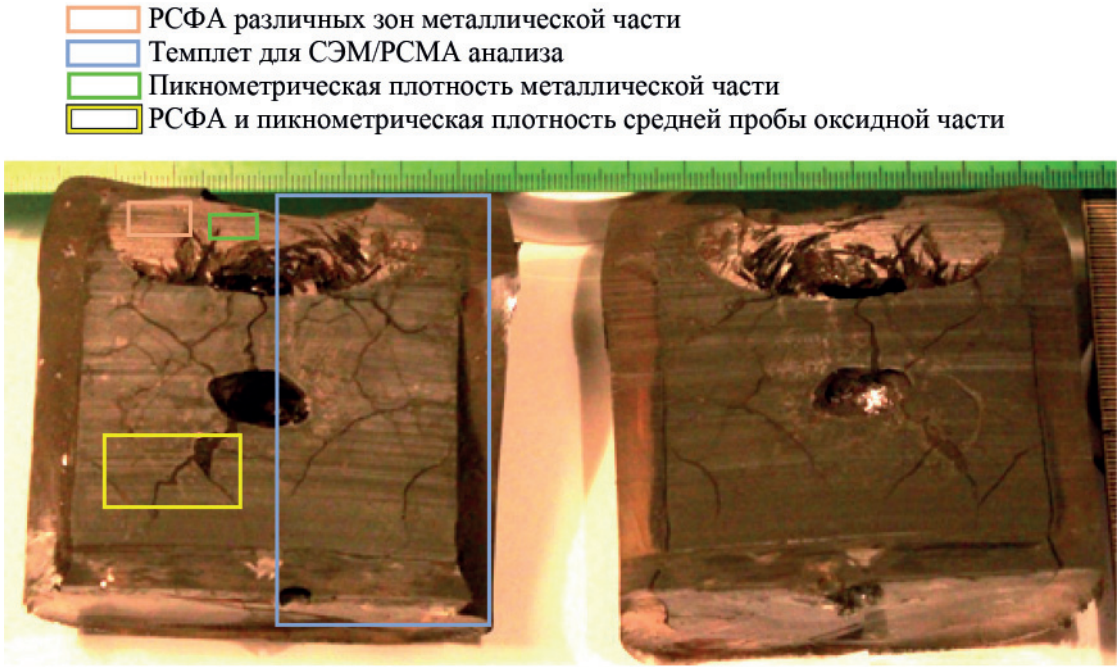


Рис. 4. Осевой разрез слитка РЕТ-05 с помеченными местами отбора проб для проведения физико-химических анализов

Элементный анализ содержания U, Zr, Fe в пробе металлической жидкости (#9) и в металлическом слитке проводился методом РСФА.

Элементный анализ содержания бора в металлическом слитке проводили методом атомно-эмиссионной спектроскопии на спектрометре с индуктивно связанной плазмой Shimatzu ICPE 9820. Метод основан на измерении интенсивности излучения (эмиссии) атомов определяемых элементов, возникающего при распылении в аргоновую плазму раствора анализируемой пробы. При этом плазму индуктивно возбуждают высокочастотным электромагнитным полем. Аналитическая линия для определения бора – 249.773 нм. Относительная погрешность метода не более 1 %.

Аналогичные анализы были выполнены для средних значений оксидного слитка, аэрозолей с кварцевой обечайки и фильтра ФБП-2.

Результаты анализа, приведенные в табл. 1, показывают, что подавляющая доля бора перешла в металлический расплав, доля Zr в металлическом расплаве существенно больше, чем в оксидном, а U – существенно меньше. Это обусловило уменьшение плотности металлического расплава по сравнению с оксидной частью, определенных по измерению пикнометрических плотностей оксидных и металлических частей слитка, что отражено в табл. 2).

Представленные в табл. 2 данные хорошо согласуются с положением составляющих в оксидно-металлическом слитке (рис. 4).

Микроструктуру и элементный состав продуктов плавки определяли методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) и рентгеноспектрального микроанализа (РСМА).

Микроструктура пробы расплава, отобранной до введения в ванну железа, состоит из двух фаз: твердого раствора на основе $U(Zr)O_{2-x}$ и распределенными в этой матричной фазе округлыми зернами α-Zr(O).

При добавлении в расплав железа происходит расслоение расплава, и проба из оксидного слоя оксидно-металлической ванны расплава имеет более высокую степень окисленности из-за уменьшения количества фазы на основе α-Zr(O).

Таблица 1

Результаты анализа образцов эксперимента PET-05

Позиция	Содержание, масс. %					Масса, г
	U	Zr	Fe	B	Примеси и O	
Проба #9	39.823	26.137	29.989	3.215*	0.836	11.673
Оксидный слиток (средняя проба)	66.149	18.883	2.094	0.165	12.709	1491.090
Металлический слиток	35.725	28.746	30.094	3.215	2.220	270.800
Аэрозоли с секций тигля	18.987	0.339	53.410	0.385	26.879	55.768
Аэрозоли с ФБП2	18.840	0.064	64.032	0.385	16.679	59.570

* определён по остатку.

Таблица 2

Результаты определения пикнометрической плотности оксидной и металлической частей слитков из эксперимента PET-05

Пикнометрическая плотность, г/см^3	
Металлический слиток	Средняя проба оксидного слитка
8.17	8.83

Микроструктура проб оксидов, отобранных на этапах добавления в расплав B_4C (#3–#8), отличаются мелкодисперсной пористостью во всех пробах по сравнению с пробой #2, а также отсутствием бора и железа в количествах, которые можно было бы зафиксировать РСМА методом. Результаты РСМА анализа также свидетельствуют об увеличении степени окисленности этих проб из-за уменьшения доли фазы на основе α-Zr(O).

Микроструктура пробы металлической составляющей расплава (#9), появившаяся на поверхности в результате инверсии, имеет в качестве фазы первичной кристаллизации игольчатые кристаллы на основе ZrB_2, между которыми закристаллизована характерная для металлической составляющей кориума структура на основе фаз $U(Zr)Fe_3$–$Zr(U)Fe_3$ и на основе Fe.

Более подробные результаты СЭМ/РСМА анализа металлической части слитка выявили наличие дендритно-закристаллизованной фазы ZrB_2, с которой сокристаллизуются оксидные глобулы (10–20 мкм) на основе твердого раствора $U(Zr)O_{2-x}$ (рис. 5).

Игольчатые кристаллы ZrB_2 являются основной фазой, закристаллизованной в металлической части. Сокристаллизующаяся с ней фаза на основе твердого раствора $U(Zr)O_{2-x}$ мала и занимает не более нескольких процентов по объему. Между игольчатыми кристаллами дендритно закристаллизована фаза на основе непрерывного ряда твердых растворов $U(Zr)Fe_3$–$Zr(U)Fe_3$, между которой находится двухфазная эвтектика из интерметаллической фазы $U(Zr)Fe_3$ и фазы на основе Fe.

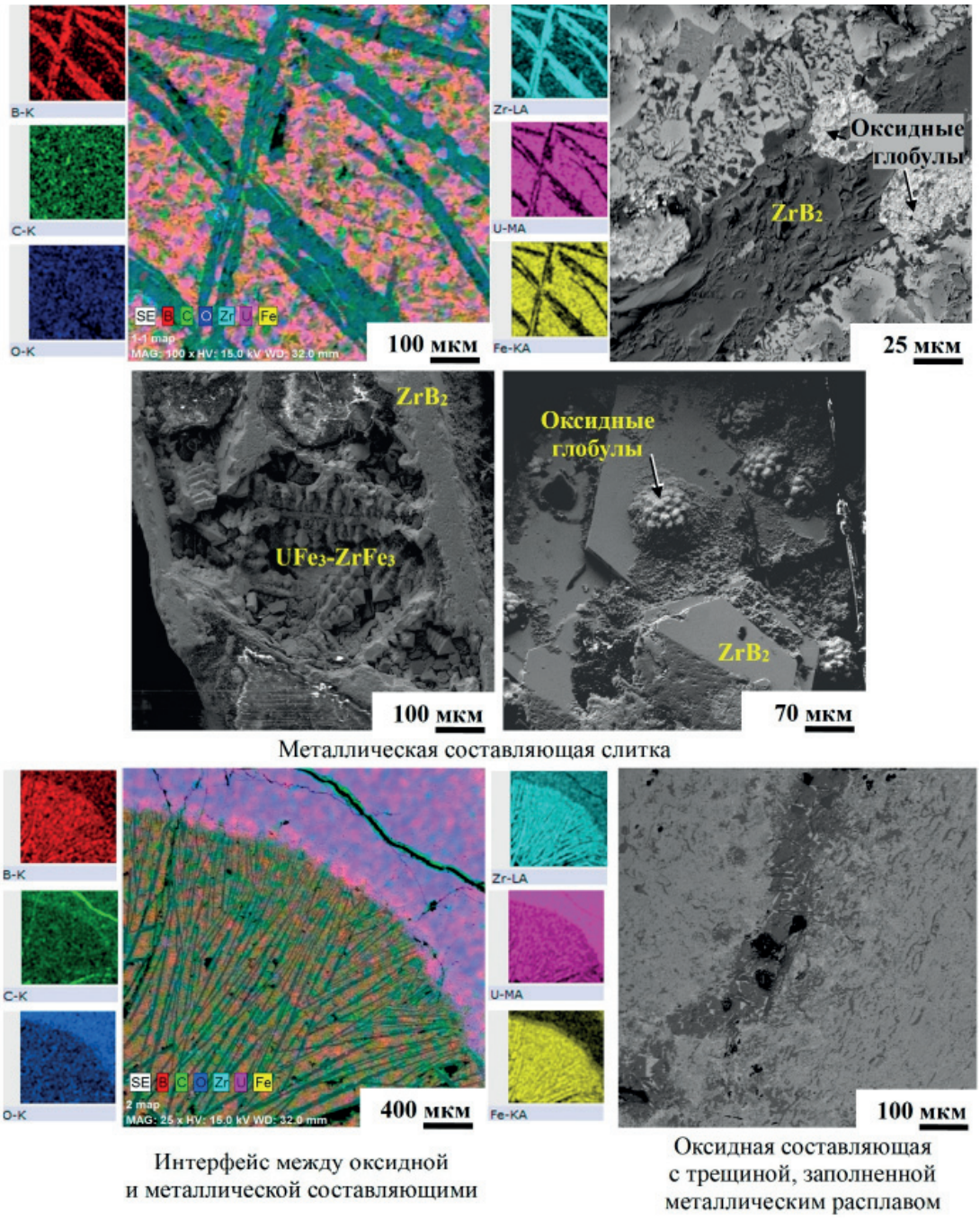


Рис. 5. Результаты СЭМ/РСМА исследований аншлифов слитка РЕТ-05

Таким образом, можно констатировать, что основная часть бора и α-Zr(O) находится в металлической части расплава.

СЭМ/РСМА анализ оксидной составляющей слитка показывает, что основной ее фазой является фаза на основе твердого раствора $U(Zr)O_{2-x}$. Также в слитке наблюдаются редкие включения фаз на основе α-Zr(O), $(U,Zr,Fe)O_{2-x}$ и $(U,Fe,Zr)O_{2-x}$. Это свидетельствует о близости микроструктурных параметров оксидной составляющей слитка кориуму более высокой степени окисленности, чем после введения в оксидный субокисленный расплав кориума Fe. Это означает, что часть U из металлической составляющей расплава при добавлении в систему карбида бора переходит в оксидную, уменьшая плотность металлической составляющей по сравнению с плотностью оксидной.

3. Обсуждение результатов

Проведение эксперимента PET-05 позволило определить влияние добавления карбида бора в расплав на основе системы U-Zr-Fe-O на изменение плотности сосуществующих в системе жидких фаз и на изменение температуры монотектики системы. В результате определен состав, при котором происходит выравнивание плотностей оксидной и металлической фаз расплава, и осуществляется их пространственная инверсия. Также экспериментально определена температура монотектики для ряда композиций, в том числе для состава расплава, соответствующего точке пространственной инверсии жидких фаз.

Полученные экспериментальные результаты температуры монотектики в опыте PET05 были сопоставлены с термодинамическими расчетами. Расчеты проводились с использованием программы GEMINI2 с базой данных NUCLEA-10.1 [25, 26]. Температурный шаг в расчетах принимался 2 K, что обеспечивало расчетное определение монотектики ±1 K.

Сравнение экспериментальных результатов PET-05 по определению температуры монотектики (T_{mon}) с расчетными значениями приведены на рис. 6 и в табл. 3. Сравнение состава характерных слоев слитка с расчетом состава сосуществующих жидкостей вблизи температуры монотектики интегрального состава слитка приведены в табл. 4.

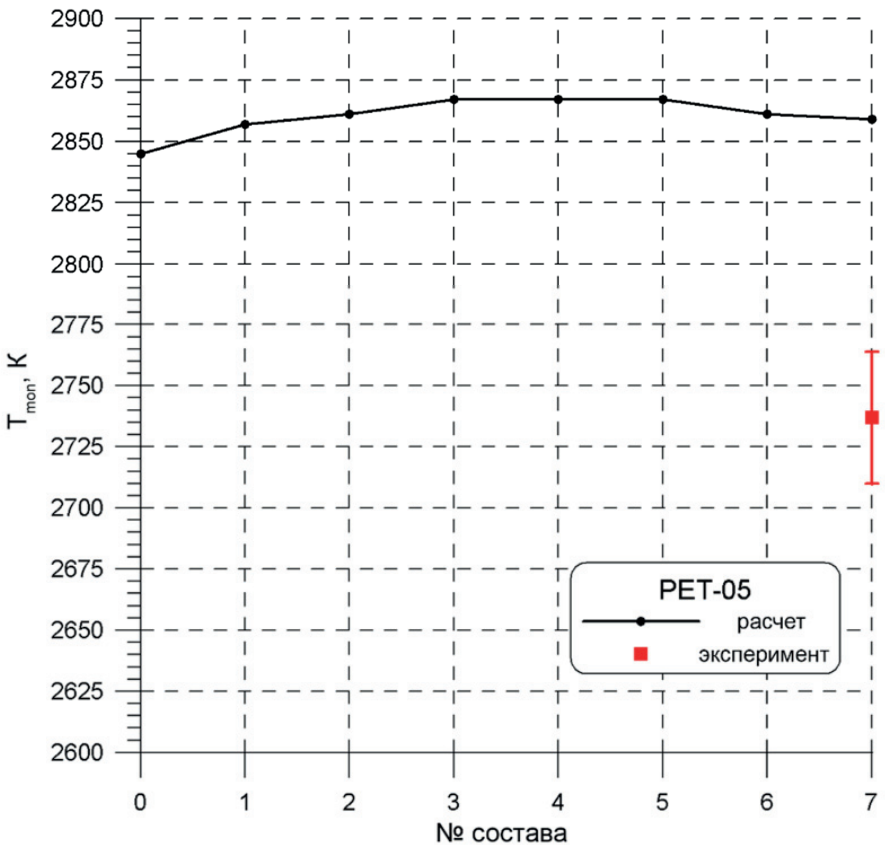


Рис. 6. Зависимость расчетной температуры монотектики от номера пробы/состава и экспериментальное значение температуры монотектики для состава, соответствующего точке инверсии PET-05

Таблица 3

Расчетная зависимость температуры монотектики от доли B_4C

№ состава		U	Zr	Fe	B	C	O	Доля B_4C, масс. %	T_{mon}, K
0	масс. %	59.6	19.0	10.0	-		11.4	0	2845
	ат. %	18.6	15.5	13.3			52.6		
1	масс. %	59.4	19.0	10.0	0.2	0.1	11.3	0.3	2857
	ат. %	18.3	15.2	13.1	1.3	0.3	51.8		
2	масс. %	59.4	19.0	10.0	0.3	0.1	11.2	0.4	2861
	ат. %	18.1	15.1	13.0	2.0	0.5	51.3		
3	масс. %	59.2	18.9	10.0	0.5	0.1	11.3	0.6	2867
	ат. %	17.8	14.8	12.8	3.2	0.8	50.6		
4	масс. %	59.2	18.9	10.0	0.5	0.2	11.2	0.7	2867
	ат. %	17.7	14.8	12.7	3.6	0.9	50.3		
5	масс. %	59.1	18.9	9.9	0.6	0.2	11.3	0.8	2867
	ат. %	17.6	14.7	12.6	4.1	1.0	50.0		
6	масс. %	59.1	18.9	9.9	0.7	0.2	11.2	0.9	2861
	ат. %	17.5	14.6	12.6	4.6	1.1	49.6		
7	масс. %	59.0	18.8	9.9	0.8	0.2	11.3	1.0	2859
	ат. %	17.4	14.5	12.5	5.0	1.3	49.3		

Таблица 4

Сравнение состава характерных слоев слитка PET-05 с расчетом состава сосуществующих жидкостей вблизи температуры монотектики для интегрального состава слитка PET-05

Составляющая		U	Zr	Fe	B	C	O	Комментарий
Оксидная (данные РСФА)	масс. %	66.2	18.9	2.1	0.2	-	12.7	Слиток PET-05
	ат. %	20.9	15.5	2.8	1.2	-	59.6	
Металлическая (данные РСФА)	масс. %	35.7	28.8	30.1	3.2	-	2.2	
	ат. %	10.4	21.9	37.4	20.7	-	9.6	
Оксидная (расчет)	масс. %	66.87	18.89	0.07	0.02	-	14.15	GEMINI2/ NUCLEA
	ат. %	20.42	15.05	0.09	0.16	-	64.28	
Металлическая (расчет)	масс. %	42.22	25.52	28.41	2.74	0.71	0.40	
	ат. %	13.61	21.46	39.03	19.43	4.56	1.91	

Из рис. 6 и табл. 3 и 4 следует, что экспериментальное значение и прогнозный расчет температуры монотектики, а также составы характерных слоев интегральных составов слитка и расчетные составы сосуществующих жидкостей вблизи температуры монотектики при доле B_4C ~ 1 масс. %, находятся в неплохом соответствии.

Заключение

Выполнены экспериментальные исследования по определению точки пространственной инверсии оксидной и металлической фаз, а также температуры монотектики оксидно-металлической двухжидкостной ванны расплава системы U-Zr-Fe-O-B_4C при порционном добавлении в систему карбида бора.

Для определения состава сосуществующих оксидного и металлического слоев оксидно-металлической ванны расплава, а также для изучения пути кристаллизации системы проведён подробный физико-химический анализ проб расплава и закристаллизованного слитка.

Определены элементный состав проб оксидного расплава в зависимости от доли введенного карбида бора. Определена микроструктура проб расплава и слитка (оксидной и металлической части).

Выполнено сравнение расчетных оценок температуры монотектики и состава сосуществующих жидкостей вблизи температуры монотектики для интегрального состава слитка и температуры монотектики, полученных в эксперименте PET-05.

Экспериментально установлено, что для кориума, отвечающего составу в масс. %: 67.61 UO_2 + 12.89 ZrO_2 + 9.50 Zr + 10.00 Fe с донным положением расплава Fe, добавление в систему карбида бора в количестве 1 масс. % приводит на уровне температур поверхности расплава 2600 °C после перераспределения компонентов к пространственной инверсии слоев расплава с устойчивым верхним положением металлической фазы расплава.

Определена температура монотектики оксидно-металлического расплава в точке инверсии, которая составила 2 564±8 °C.

Расчетные значения температуры монотектики с ростом доли карбида бора изменяются в пределах 50 К. Экспериментально определенная температура монотектики ниже расчетного значения на 100 К.

Полученные данные можно использовать для уточнения баз данных и расчётных кодов, моделирующих внутрикорпусные стадии тяжелых аварий реакторов водо-водяного типа [27], в частности, аварии на АЭС Фукусима-Дайичи [28].

Благодарности

Работа выполнена в рамках проекта АЯЭ/ОЭСР TCOFF (контракт 400136852/500081634 с АЯЭ/ОЭСР на оказание интеллектуальных услуг в рамках проекта TCOFF «Исследование фазовых равновесий в системе U-Zr-Fe-O-B-C»).

Авторы выражают благодарность M. Kurata (CLADS/JAEA, Japan) и D. Costa (NEA/OECD, France) за существенную помощь в планировании работ и в обсуждении результатов проведенных исследований. Авторы также благодарят Н.А. Сташек и Р.В. Котова за помощь в проведении исследований методом атомно-эмиссионной спектроскопии (ЛО филиал СЗТО ФГУП «РосРАО»).

Литература

1. Сайт проекта TCOFF. – URL: https://www.oecd-nea.org/science/tcoff/. – Проверено 18.10.2021.
2. Elaboration of a Phenomena Identification Ranking Table (PIRT) for the modelling of In-Vessel Retention / F. Fichot [et al.] // Ann. Nucl. Energy. – 2020. – V. 146. – Art. 107617. – DOI: 10.1016/j.anucene.2020.107617.
3. Experimental study of transient phenomena in the three-liquid oxidic-metallic corium pool / V.I. Almjashev [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2018. – V. 332. – P. 31–37. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2018.03.004.

4. Corium phase equilibria based on MASCA, METCOR and CORPHAD results / S.V. Bechta [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2008. – V. 238. – P. 2761–2771. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2008.04.018.

5. Experimental studies of oxidic molten corium – vessel steel interaction / S.V. Bechta [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2001. – V. 210. – P. 193–224. – DOI: 10.1016/S0029-5493(01)00377-6.

6. Quality improvements of thermodynamic data applied to corium interactions for severe accident modelling in SARNET2 / S. Bakardjieva [et al.] // Ann. Nucl. Energy. – 2014. – V. 74. – P. 110–124. – DOI: 10.1016/j.anucene.2014.06.023.

7. *Carénini L.* Modelling issues related to molten pool behaviour in case of In-Vessel Retention strategy / L. Carénini, F. Fichot, N. Seignour // Ann. Nucl. Energy. – 2018. – V. 118. – P. 363–374. – DOI: 10.1016/j.anucene.2018.04.032.

8. *Nandan Sh.* A simplified model for the quaternary U-Zr-Fe-O system in the miscibility gap / Sh. Nandan, F. Fichot, B. Piar // Nucl. Eng. Des. – 2020. – V. 364. – Art. 110608. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2020.110608.

9. Влияние термоградиентных условий на физико-химическое взаимодействие расплава субокисленного кориума и корпусной стали при удержании расплава в корпусе реактора / В.Б. Хабенский [и др.] // Технол. обесп. жизн. цикла ядерн. энергет. устан. – 2018. – № 2 (12). – С. 42–65. – eLIBRARY ID: 35591098.

10. Экспериментальное исследование влияния структуры ванны расплава и поверхностной оксидной корки на кинетику окисления расплава кориума / А.А. Сулацкий [и др.] // Технол. обесп. жизн. цикла ядерн. энергет. устан. – 2019. – 1 (15). – Р. 66–80. – eLIBRARY ID: 37643366.

11. Main outcomes from the IVR code benchmark performed in the European IVMR project / L. Carénini [et al.] // Ann. Nucl. Energy. – 2020. – V. 146. – Art. 107612. – DOI: 10.1016/j.anucene.2020.107612.

12. Experimental study of oxidic-metallic melt oxidation / A.A. Sulatsky [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2020. – V. 363. – Art. 110618. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2020.110618.

13. A method for predicting the structure of corium pool in lower plenum of reactor vessel / L.L. Liu [et al.] // Prog. Nucl. Energy. – 2019. – V. 112. – P. 233–240. – DOI: 10.1016/j.pnucene.2019.01.005.

14. Three-dimensional numerical simulation of droplet formation by Rayleigh–Taylor instability / R.Zanella [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2021. – V. 379. – Art. 111177. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2021.111177.

15. Effect of temperature gradient on chemical element partitioning in corium pool during in-vessel retention / V.B. Khabensky [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2018. – V. 327. – P. 82–91. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2017.11.030.

16. Effect of stratified interface instability on thermal focusing effect in two-layer corium pool / K. Ge [et al.] // Int. J. Heat Mass Transfer. – 2019. – V. 133. – P. 359–370. – DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.12.117.

17. *Viot L.* Modeling of the corium crust of a stratified corium pool during severe accidents in light water reactors / L. Viot, R. Le Tellier, M. Peybernes // Nucl. Eng. Des. – 2020. – V. 368. – Art. 110816. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2020.110816.

18. Экспериментальное определение точки пространственной инверсии сосуществующих фаз расплава в системе U-Zr-Fe-O / Хабенский В.Б. [и др.] // Технол. обесп. жизн. цикла ядерн. энергет. устан. – 2021. – № 3 (25). – С. 63–81. – DOI: 10.52069/2414-5726_2021_3_25_63.

19. РАСПЛАВ. Удержание расплавленных материалов активной зоны водоохлаждаемых реакторов: международные проекты RASPLAV и MASCA (1994–2006) / под ред. В.Г. Асмолова, А. Ю. Румянцева, В. Ф. Стрижова. – М.: Концерн Росэнергоатом, 2018. – 576 с.

20. *Fischer M.* Impact of B_4C on the Stratification of Molten Steel and BWR-type Core Material under IVR Conditions / M. Fischer, A.A. Sulatsky, E.V. Krushinov / International Congress on Advances in Nuclear Power Plants – ICAPP 2012. – 2012. – Paper 12452.

21. Исследования, выполненные на комплексе экспериментальных установок «Расплав» отдела исследований тяжелых аварий ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» /Альмяшев В.И. [и др.] // Технол. обесп. жизн. цикла ядерн. энергет. устан. – 2020. – № 4 (22). – С. 69–89. – eLIBRARY ID: 44757042.

22. *Петров Ю.Б.* Индукционная плавка окислов. Л.: Энергоатомиздат, 1983. – 104 с.

23. Индукционная плавка кориума в холодном тигле. Оборудование и применение / Д.Б. Лопух [и др.]. – СПб.: Изд-во СПбГЭТУ «ЛЭТИ», 2019. – 172 с.

24. Индукционная плавка кориума и варка стекла в холодном тигле. Свойства и моделирование / Д.Б. Лопух [и др.]. – СПб.: Изд-во СПбГЭТУ «ЛЭТИ», 2021. – 179 с.

25. *Cheynet B.* Thermosuite / B. Cheynet, P.Y. Chevalier, E. Fischer // Calphad. – 2002. – V.26, № 2. – P. 167–174. – DOI: 10.1016/S0364-5916(02)00033-0.

26. NUCLEA «propriétés thermodynamiques et équilibres de phases dans les systems d'intérêt nucléaire» / B. Cheynet [et al.] // J. Phys. IV France. – 2004. – V.113. – P. 61–64. – DOI: 10.1051/jp4:20040014.

27. *Barrachin M.* Corium Experimental Thermodynamics: A Review and Some Perspectives / M. Barrachin // Thermo. – 2021. – V. 1(2). – P. 179-204. – DOI: 10.3390/thermo1020013.

28. *Li X.* Sensitivity analysis of in-vessel accident progression behavior in Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Unit 3 / X. Li, I. Sato, A. Yamaji // Ann. Nucl. Energy. – 2019. – V. 133. – P. 21–34. – DOI: 10.1016/j.anucene.2019.05.009.

УДК 544.344.4; 621.039.586 DOI:10.52069/2414-5726_2021_4_26_67

Определение теплопроводности корки, формирующейся на расплаве кориума при тяжёлой аварии на АЭС

В.Б. Хабенский[1], В.С. Грановский[1], В.А. Василенко[1], В.И. Альмяшев[1,2,3], Е.В. Крушинов[1], С.А. Витоль[1], А.А. Сулацкий[1], В.В. Гусаров[4]

[1] ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской обл., Россия

[2] ФГАОУ ВО «Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет им. В.И. Ульянова (Ленина) «ЛЭТИ», Санкт-Петербург, Россия

[3] ФГБУН «Институт химии силикатов им. И.В. Гребенщикова РАН», Санкт-Петербург, Россия

[4] ФГБУН «Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН», Санкт-Петербург, Россия

Аннотация

В работе предложен новый метод определения теплопроводности оксидной корки, формирующейся на поверхности ванны расплава оксидно-металлического кориума, прототипного кориуму, который образуется при тяжелой аварии на АЭС с ВВЭР. В предложенном методе способ формирования корки, определяющий ее элементный и фазовый составы, микроструктурные особенности, включая характер пористости, максимально приближен к реакторным условиям. Приведен обзор известных способов определения теплопроводности оксидных корок кориума с анализом точности измерения и ограничений, связанных с технологией изготовления экспериментальных образцов. С использованием предложенного метода определена теплопроводность оксидной корки, образованной на поверхности расплава в экспериментах проекта CORDEB. Продемонстрирована хорошая сходимость результатов экспериментов и выполненных оценок. Предложенный метод может быть использован для уточнения теплопроводности корки кориума при расчетном анализе внутрикорпусной стадии тяжелой аварии на АЭС с водо-водяными реакторами.

Ключевые слова: расплав кориума, корка кориума, теплопроводность, тяжелые аварии.

Determination of the thermal conductivity of the crust formed on the corium melt during a severe accident at a nuclear power plant

V.B. Khabensky[1], V.S. Granovsky[1], V.A. Vasilenko[1], V.I. Almjashev[1, 2, 3], E.V. Krushinov[1], S.A. Vitol[1], A.A. Sulatsky[1], V.V. Gusarov[4]

[1] FSUE “Alexandrov NITI”, Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia

[2] Saint Petersburg Electrotechnical University “LETI”, Saint Petersburg, Russia

[3] I.V. Grebenshchikov Institute of Silicate Chemistry of RAS, Saint Petersburg, Russia

[4] Ioffe Institute, Saint Petersburg, Russia

Abstract

The article proposes a new method for determining the thermal conductivity of an oxidic crust formed on the surface of a molten pool of oxidic-metallic corium, which a prototypic corium that forms during a severe accident at a nuclear power plant with VVER. In the proposed method, the way of crust formation, which determines its elemental and phase compositions, microstructural features, including the nature of porosity, is as close as possible to

reactor conditions. A review of the known methods for determining the thermal conductivity of corium oxidic crusts is given with an analysis of the measurement accuracy and limitations associated with the technology of manufacturing experimental samples. Using the proposed method, the thermal conductivity of the oxidic crust formed on the melt surface in the CORDEB project experiments was determined. The good convergence of the experimental results and the performed estimates is demonstrated. The proposed method can be used to refine the thermal conductivity of the corium crust in the calculation analysis of the in-vessel stage of a severe accident at a nuclear power plant with pressurized water reactors.

Key words: corium melt, corium crust, thermal conductivity, severe accidents.

Введение

Для надежного обоснования локализации расплава кориума, образующегося при тяжелой аварии с плавлением активной зоны ВВЭР, необходима разработка расчетных моделей теплогидравлических, физико-химических, механических процессов для всех стадий развития аварии. Одним из таких процессов является окисление оксидно-металлической ванны расплава водяным паром или паровоздушной смесью [1–4]. При верхнем положении металлической составляющей двухжидкостной ванны оксидно-металлического расплава кориума, характерном для внутрикорпусной стадии аварии, это может привести к усилению фокусирующего эффекта – к увеличению тепловой нагрузки на корпус – из-за дополнительного тепловыделения в металлическом слое за счет экзотермических реакций окисления содержащихся в расплаве восстановителей (Zr, U, Cr, Fe), которое для ВВЭР-1000 может составлять до 50 % от остаточного энерговыделения в расплаве [5]. Кроме того, взаимодействие водяного пара с указанными восстановителями приводит к генерации водорода.

Используемые в расчетных моделях теплофизические свойства кориума, как жидкого, так и в закристаллизованном состоянии, определяются путем проведения целенаправленных экспериментальных исследований. Наиболее полный анализ указанных свойств приведен в работах [6–9], в которых отмечается ограниченность и недостаточная надежность опубликованных экспериментальных данных [10–14], а также методов их расчетной оценки [15, 16]. Это полностью относится к теплопроводности корки кориума, оказывающей существенное влияние на интенсивность окисления ванны расплава. Так, в [5] было показано, что наличие поверхностной корки уменьшает скорость окисления расплава приблизительно в 3 раза.

В [17] на основе закона Фика путем обобщения экспериментальных данных была получена зависимость для расчета скорости окисления расплава кориума при наличии поверхностной оксидной корки:

$$J_{ox} = 4.09 \cdot 10^{-11} \exp\left[-\frac{E_a}{RT_w}\right] \cdot \frac{(T_w^{\,4} - T_2^{\,4})}{\lambda(T_L - T_w)} \cdot C_{in} \,, \qquad (1)$$

где

J_{ox} – удельная на единицу площади мольная скорость переноса окислителя через корку (скорость окисления, так как процесс массопереноса окислителя является лимитирующим для окисления), моль/(м^{2}с);

T_2 – температура поверхностей над расплавом, К;

λ – теплопроводность оксидной корки, Вт/(м·К);

T_L – температура ликвидус (монотектики) оксидно-металлического расплава (температура поверхности интерфейса корка/расплав), К;

T_w – температура поверхности корки, К;

C_{in} – концентрация окислителя на входе в объем над расплавом, моль/м^3;

E_a – энергия активации процесса окисления, Дж/моль (70 кДж/моль);

R – универсальная газовая постоянная (8.31 Дж/(моль·К)).

Как видно из (1), скорость окисления (скорость поглощения расплавом кислорода) обратно пропорциональна величине теплопроводности. Поэтому повышение точности определения теплопроводности корки является актуальной задачей.

1. Обзор методов определения теплопроводности корки кориума

При отсутствии данных по теплопроводности корки кориума, в принципе, можно использовать результаты измерений теплопроводности отдельных компонентов, составляющих закристаллизованный кориум: UO_2, ZrO_2 и Zr [5, 17, 18]. Однако экспериментально определенные значения теплопроводности различаются у разных авторов в 2–3 раза для оксидных компонентов, что связано, в первую очередь, с различной технологией изготовления образцов [9, 19], и в 2 раза для металлического Zr из-за наличия в нем примесей [7]. Тем не менее, в [8] применительно к конкретным сценариям аварии данные по теплопроводности для тяжелоаварийных расчетных кодов определялись на основе свойств отдельных компонентов с использованием закона аддитивности.

Фазовый состав реальной корки отличается от компонентного и, соответственно, закон аддитивности чистых компонентов может дать лишь грубую оценку. Результаты экспериментальных исследований теплопроводности корки прототипного кориума с фазовым составом, приближенным к реальному (на основе твёрдого раствора $(U, Zr)O_2$, а также смеси твердого раствора $(U, Zr)O_2$ и металлического Zr), опубликованы в [8, 9].

В [9] образцы для экспериментального определения теплопроводности были изготовлены по технологии порошковой металлургии из крупки UO_2, ZrO_2 и металлического Zr (C-22) и из крупки UO_2 и ZrO_2 (C-100) путем спекания при температуре 2 300 °C и имели форму прямоугольных брикетов и цилиндрических стаканов с пористостью 17–22 %. Подготовленные таким образом брикеты размалывались до состояния крупки с размером зёрен 0.2–1 мм с пористостью 40–50 %.

Для измерения теплопроводности твердого и жидкого кориума в [9] использовались две методики – стационарная и нестационарная. Рассмотрим способы определения теплопроводности твердых образцов. В стационарной постановке образец кориума в виде засыпки или кольцевых брикетов размещался между двумя цилиндрическими обоймами из вольфрама, на которых были закреплены вольфрам-рениевые термоэлектрические преобразователи, которые позволяли определять перепад температур на исследуемых образцах. Кроме того, температура на внешней вольфрамовой образующей измерялась пирометрическим способом. Во внутреннем пространстве цилиндрической обоймы размещался вольфрамовый трубчатый нагреватель, обеспечивающий подвод к образцу кориума заданного теплового потока. Снаружи внешней обоймы с образцом размещались тепловые экраны, которые позволяли устанавливать требуемый температурный перепад по толщине исследуемого образца. Вся сборка с образцом кориума размещалась внутри водоохлаждаемого кожуха, внутренняя полость которого вакуумировалась и заполнялась инертным газом (гелием или аргоном). Исходя из геометрических размеров образца, теплового потока, подводимого к образцу, и измеренного перепада температур на внутренней и внешней обойме, определялась теплопроводность образца. Точность определения оценена авторами в 10 %.

Методика не позволяет определять теплопроводность при температуре выше 2300 °C из-за деградации вольфрамового нагревателя. Но главным ее недостатком является то, что теплофизические характеристики имитатора корки кориума, изготовленного методом порошковой металлургии, отличаются от характеристик корки, сформированной в реальных условиях, т.е. кристаллизацией расплава кориума. Характеристики реальной корки кориума могут зависеть от многих факторов, главным образом, от её состава и структуры, в целом, связанных с конкретными условиями ее образования: кислородного потенциала системы, скорости кристаллизации расплава, атмосферы над расплавом.

Нестационарная методика, использованная в [9], основана на определении теплопроводности образца кориума путем анализа изменения температуры от одного стационарного уровня до другого при скачкообразном подъёме (или спаде) мощности, выделяемой в вольфрамовом нагревателе. Образец кориума цилиндрической формы толщиной 1 мм размещался между вольфрамовым нагревателем и вольфрамовым цилиндрическим вытеснителем. Измерение температуры поверхности нагревателя проводилось пирометрическим способом, а также вольфрам-рениевой термопарой.

Термограмма переходного процесса и величина скачкообразного подъема мощности с учетом геометрических характеристик системы «вольфрамовый нагреватель – образец кориума – вольфрамовый вытеснитель», а также теплоемкость и плотность этих материалов позволили определить изменение внутренней энергии в этой системе. Далее, с использованием полученной информации решалось уравнение теплопроводности с граничными условиями для рассматриваемой системы из трех элементов при варьировании величиной теплопроводности образца кориума, и ее окончательное значение определялась при достижении минимального стандартного отклонения расчетной температуры от экспериментальной на всем временном интервале переходного процесса [9].

Недостатки нестационарного метода такие же, как и стационарного, и, кроме того, дополнительно связаны с использованием значений теплоемкости и плотности материалов, в том числе оксидного образца, определяемых с низкой точностью. Поэтому в [9] применение нестационарного метода приводит даже для простых составов к неопределенности результатов, превышающей 30 %.

В [8] была использована другая технология изготовления образцов прототипного оксидного кориума и другая методика определения их теплопроводности. Исходный оксидный кориум на основе оксидов урана и циркония изготавливался золь-гель методом. В результате получался однородный оксидный материал в виде шариков различного размера. Далее полученный материал прессовался и спекался искровым методом. Полученные образцы кориума имели форму дисков толщиной 1 мм и диаметром 6 мм. Диски отжигались в Ar/H_2 атмосфере для снятия напряжений, возникших при спекании, и обеспечения атомного соотношения кислорода к металлу (урану и цирконию) 2:1. Однако изготовленные таким образом материалы также весьма далеки от реальной оксидной корки, сформированной кристаллизацией расплава.

Помимо синтезированных образцов прототипного кориума в [9] был исследован образец из шурфа закристаллизованного расплава кориума аварийного реактора TMI-2 (США). Образец кориума имел состав, в ат. %: U – 18, Zr – 23, Fe/Ni/Cr/Al – 59. Элементный и фазовый состав всех образцов кориума в [8] и [9] определяли методами рентгенофазового анализа (РФА) и сканирующей электронной микроскопии с рентгеноспектральным микроанализом (СЭМ/РСМА).

Температуропроводность образцов кориума была определена методом лазерной вспышки [20]. Для определения теплопроводности образцов при известных значениях температуропроводности необходимо знание плотности и теплоемкости кориума. В [13] теплоемкость оцени-

валась как суперпозиция теплоемкости чистых оксидов UO_2 и ZrO_2 [21–26] в соответствии с их долями в образце. Плотность определялась путем геометрических, весовых и пикнометрических измерений.

Погрешность определения теплопроводности, помимо погрешности, связанной с определением температуропроводности, зависит также от погрешности определения теплоемкости, возникающей из-за трудности точной оценки фазового состава образца [8]. Кроме того, исследование образцов кориума TMI-2 [8, 27, 28] показало различие их фазовых составов с составами образцов-имитаторов кориума, полученных в [8–10]. Образцы кориума TMI-2 имели также особенности пористости и структуры, связанные с медленной кристаллизацией оксидно-металлического расплава, и, соответственно, зависели от места их отбора. Таким образом, образцы кориума TMI-2 по всем отмеченным характеристикам существенно отличались от образцов-имитаторов, которые используются при определении свойств кориума.

Следует отметить, что при определении температуропроводности образцов кориума TMI-2 наблюдалась неоднозначность результатов [8, 14]. Во-первых, она проявлялась при проведении начального и завершающего температурных циклов: начальный цикл демонстрировал более высокие значения температуропроводности. Во-вторых, для образцов TMI-2 в температурном диапазоне 1000–1200 °C наблюдался существенный гистерезис температуропроводности на кривых нагревания/охлаждения, отсутствующий в образцах-имитаторах. При нагреве наблюдался сильный рост температуропроводности с последующим снижением при росте температуры, а при охлаждении наблюдался экзотермический эффект.

Несмотря на существенный прогресс в изучении и определении теплопроводности прототипных образцов оксидного кориума в [8, 9] отмечается, что на величину теплопроводности сильно влияет технология изготовления образцов, отличия в фазовом составе и структуре образцов-имитаторов от реального кориума. Также сильное влияние на точность определения оказывают неопределенность оценки теплоемкости, пористость и особенности порового пространства. Кроме того, состав корок, формирующихся в ванне расплава кориума, будет сильно зависеть, помимо перечисленных выше факторов, от присутствия в расплаве продуктов деления и продуктов взаимодействия с конструкционными и функциональными материалами реактора. На внутрикорпусной стадии – это внутриреакторные конструкционные материалы, материалы стержней регулирования системы управления и защиты (СУЗ), сталь корпуса реактора. На внекорпусной стадии – бетон шахты реактора, бетонные и керамические жертвенные материалы устройств локализации расплава.

Таким образом, для надежного расчетного моделирования физико-химических процессов в оксидно-металлической ванне расплава кориума в корпусе реактора и в устройстве локализации расплава требуется проведение экспериментальных исследований теплопроводности оксидных корок прототипного (необлученного) кориума в условиях, максимально приближенных к реакторным.

2. Новый метод определения теплопроводности оксидных корок, образованных на поверхности ванны оксидно-металлического расплава кориума

Разработанный метод предназначен для определения теплопроводности корок, образованных на поверхности ванны оксидно-металлического расплава прототипного кориума с верхним положением металлической жидкости, хотя в общем случае метод применим для определения теплопроводности практически любых неоднородных материалов. Соответственно, новый метод определения теплопроводности корки прототипного кориума может быть использован

в ядерной энергетике при проведении анализа безопасности АЭС с ядерными реакторами водо-водяного типа при тяжёлых авариях с нарушением охлаждения, плавлением активной зоны и формированием оксидно-металлической ванны расплава кориума [29].

Оксидно-металлическая ванна расплава кориума с поверхностным расположением слоя металлической жидкости может реализоваться при малой степени окисленности кориума с большим количеством стали в системе (более 30 масс. %), или при большой степени окисленности (вплоть до полного окисления) кориума с практически любым количеством стали, или в случае присутствия в расплаве материалов с низкой плотностью, например, материала регулирующих органов СУЗ (карбид бора в количестве более 1 масс. %) [5, 9, 17, 18, 30–33]. Подобную ванну расплава прототипного кориума можно реализовать, например, на комплексе экспериментальных установок «Расплав» [34], использующих для приготовления расплава кориума технологию индукционной плавки в холодном тигле (ИПХТ) [35–37]. Образование корки на расплаве можно обеспечить охлаждением поверхностной зоны ванны расплава (например, выводом этой зоны из поля индуктора или электромагнитным экранированием верхних витков индуктора). Окисление расплава осуществляется подачей окислителя в газовое пространство над коркой.

После стабилизации теплового режима необходимо провести измерение температуры поверхности корки, что можно выполнить пирометрически или с использованием вольфрам-рениевого термоэлектрического преобразователя. Эти измерения позволяют определить тепловой поток, отводимый излучением от наружной поверхности корки по следующей зависимости:

$$Q = S \cdot \sigma \frac{T_{н}^4 - T_0^4}{1/\varepsilon_{н} + 1/\varepsilon_0 - 1}, \qquad (2)$$

где

Q – тепловой поток, отводимый излучением от наружной поверхности корки, Вт;

S – площадь наружной поверхности корки, м^2;

σ – постоянная Стефана-Больцмана ($5.67 \cdot 10^{-8}$ Вт/(м^2 К^4));

$\varepsilon_{н}$ – излучательная способность корки;

ε_0 – излучательная способность поверхности, воспринимающей тепловой поток излучения;

$T_{н}$ – температура наружной поверхности корки, К;

T_0 – температура поверхности, воспринимающей тепловой поток излучения, К.

Температура внутренней поверхности корки определяется как температура ликвидус (монотектики) расплава, поскольку вблизи их интерфейса в установившемся тепловом режиме система близка к локально-равновесному термодинамическому состоянию. Это позволяет определить указанную температуру расчетным путем по известным данным о термодинамических свойствах чистых компонентов и по фазовым равновесиям многокомпонентных систем. Существуют базы данных и использующие их расчетные программы (программы-минимизаторы энергии Гиббса), позволяющие выполнить такие оценки [38, 39]. Помимо универсальных баз данных существуют и специализированные термодинамические базы данных, в частности для анализа тяжелых аварий на АЭС [40, 41], позволяющие получить информацию о характеристических температурах системы. Если информация по отдельным компонентам

системы отсутствует, или расчетную оценку не удается осуществить по иным причинам, или есть необходимость более точной оценки для конкретной композиции, то температуру ликвидус (монотектики) можно определить экспериментально, например, методом визуального политермического анализа в условиях ИПХТ (ВПА ИПХТ). Суть метода состоит в захолаживании поверхности расплава с одновременной регистрацией температуры и состояния поверхности (момента появления твердой фазы в пятне визирования пирометра) [42].

После некоторой выдержки системы «расплав-корка» в установившемся тепловом режиме расплав кристаллизуют, слиток разрезают и измеряют толщину образованной на поверхности металлической части слитка корки. Далее вычисляют теплопроводность корки кориума по зависимости для стационарной теплопроводности плоской пластины, исходя из равенства кондуктивного теплового потока через корку тепловому потоку излучения от наружной поверхности корки:

$$\lambda = \frac{Q \cdot \delta}{S(T_{\text{вн}} - T_{\text{н}})}, \qquad (3)$$

где

λ – теплопроводность корки, Вт/(м·К);

Q – тепловой поток, отводимый излучением от наружной поверхности корки, Вт;

δ – толщина корки, м;

S – площадь наружной поверхности корки, м^2;

$T_{\text{вн}}$ – температура внутренней поверхности корки, К;

$T_{\text{н}}$ – температура наружной поверхности корки, К.

Следует подчеркнуть, что сформированная описанным способом корка имеет элементный и фазовый состав, микроструктурные особенности и, следовательно, теплофизические характеристики, наиболее приближенные к натурным реакторным условиям, и предложенный метод определения теплопроводности позволяет дать наиболее близкие к реакторным условиям оценки.

3. Примеры реализации предложенного метода

В качестве иллюстрации описанного в разделе 2 метода приведем два примера определения теплопроводности корок, сформированных на оксидно-металлическом расплаве прототипного кориума.

Экспериментальные данные для определения теплопроводности были получены в исследованиях кинетики окисления, двухжидкостной оксидно-металлической ванны расплава субокисленного прототипного кориума с поверхностным положением металлической жидкости, проведенных на установке «Расплав-3» комплекса экспериментальных установок «Расплав» в ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» [34] в рамках программы CORDEB по контракту IRSN-НИТИ. Схема установки приведена на рис. 1.

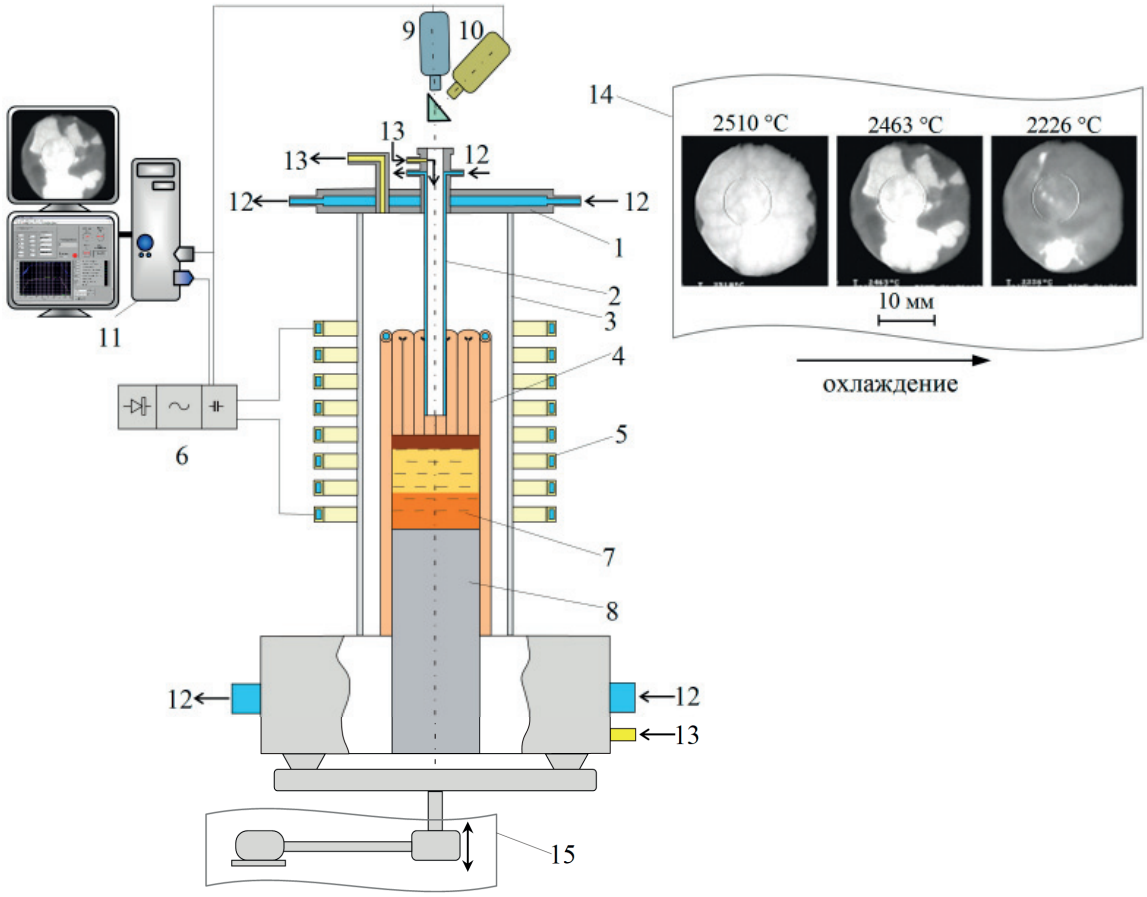


Рис. 1. Схема установки «Расплав-3»:

1 – водоохлаждаемая крышка; 2 – шахта наблюдения за поверхностью расплава; 3 – кварцевая обечайка; 4 – «холодный» тигель; 5 – индуктор; 6 – высокочастотный генератор; 7 – оксидно-металлический расплав с поверхностной коркой; 8 – металлическое дно; 9 – пирометр спектрального отношения RAYTEK MR1-SC; 10 – видеокамера; 11 – система управления и записи наблюдений; 12 – вход и выход охлаждающей воды; 13 – вход и выход газа; 14 – вид поверхности расплава и образование твердой фазы в процессе охлаждения; 15 – устройство перемещения тигля.

В опытах серии CD2 программы CORDEB были проведены, в частности, два эксперимента с измерением толщины поверхностной оксидной корки: CD2-01(2) и CD2-02 [5]. Эксперименты отличались способом формирования корки. В эксперименте CD2-01(2) корка была сформирована в нейтральной атмосфере, а в эксперименте CD2-02 корка формировалась подачей аргон-кислородной смеси с малым содержанием кислорода (2 об.%). В опытах была реализована следующая спецификация: индекс окисленности кориума C-30; U/Zr отношение, в атомных долях: 1.2; отношение нержавеющей стали к кориуму, в массовых долях: 0.4. Эти условия обеспечивали поверхностное расположение металлической жидкой фазы в расплаве. Наплавление исходной ванны расплава проводилось в атмосфере сухого аргона высокой чистоты. После формирования корки осуществлялось окисление расплава подачей в пространство над коркой аргон-кислородной смеси с расходом 600 л/ч с долей кислорода 20 об.%.

3.1 Эксперимент CD2-01(2)

В эксперименте CD2-01(2) формирование корки в инертной атмосфере (Ar) обеспечивается содержанием в металлической жидкости (наряду с ураном и цирконием) небольшого количества кислорода, что при захолаживании поверхностной зоны приводит к кристаллизация твердого раствора $(U, Zr)O_{2-x}$.

После формирования поверхностной корки в печь через шахту пирометра подавалась аргон-кислородная смесь. На рис. 2 приведена схема расположения слоев в расплаве, а на рис. 3 – изменение во времени вводимой в расплав мощности и показаний пирометра.

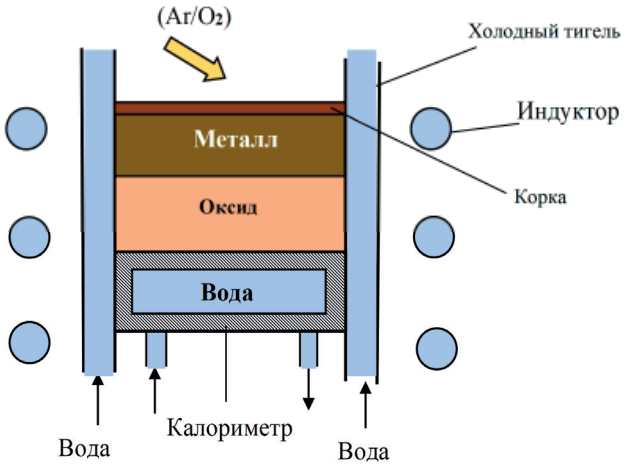


Рис. 2. Схема структуры ванны расплава [5]

Из показаний, приведенных на рис. 3, следует, что в стабильном тепловом режиме средняя температура поверхностной оксидной корки после подачи окислителя в пространство печи над коркой составляла 1800 °С.

После завершения эксперимента оксидно-металлический слиток извлекли из тигля (схема слитка приведена на рис. 4), и был выполнен его комплексный физико-химический анализ [5].

Оксидная корка, сформированная над расплавом, имела толщину 7–10 мм. Как показал анализ методом СЭМ/РСМА, корка имеет плотную структуру и неоднородный состав [5]. В центральной части слитка в составе корки в направлении от нижней поверхности к верхней изменяется соотношение U и Zr в сторону уменьшения доли урана. При этом в области нижней поверхности доля урана доходит до 70 масс. %. Корка содержит многочисленные металлические включения. Согласно комплексному анализу, корка имеет следующий средний состав, в масс. %: 53.3 U, 16.0 Zr, 15.7 Fe(Cr, Ni), 15.0 O [5]. Расчетные оценки с помощью кода GEMINI/NUCLEA дают температуру на нижней границе корки (температуру монотектики исходного расплава), равную 2 350 °С.

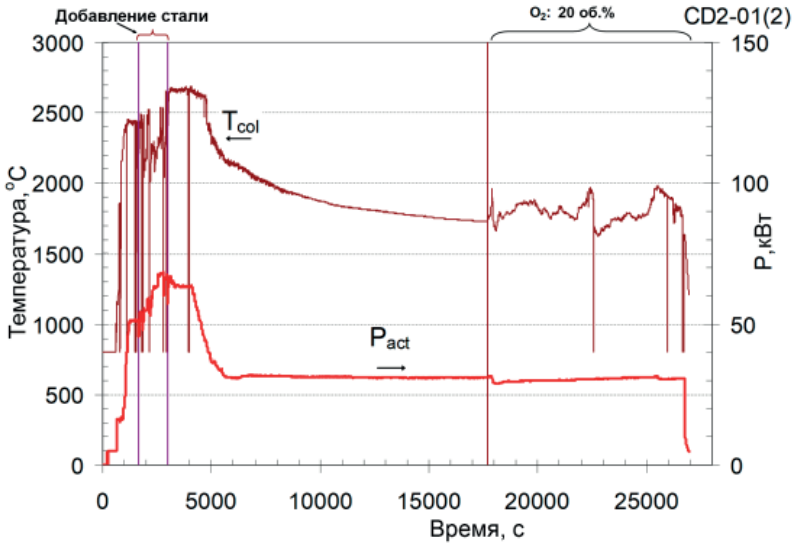


Рис. 3. Показания суммарной активной мощности, вводимой в холодный тигель (P_{act}), и пирометра (T_{col}) в эксперименте CD2-01(2) [5]

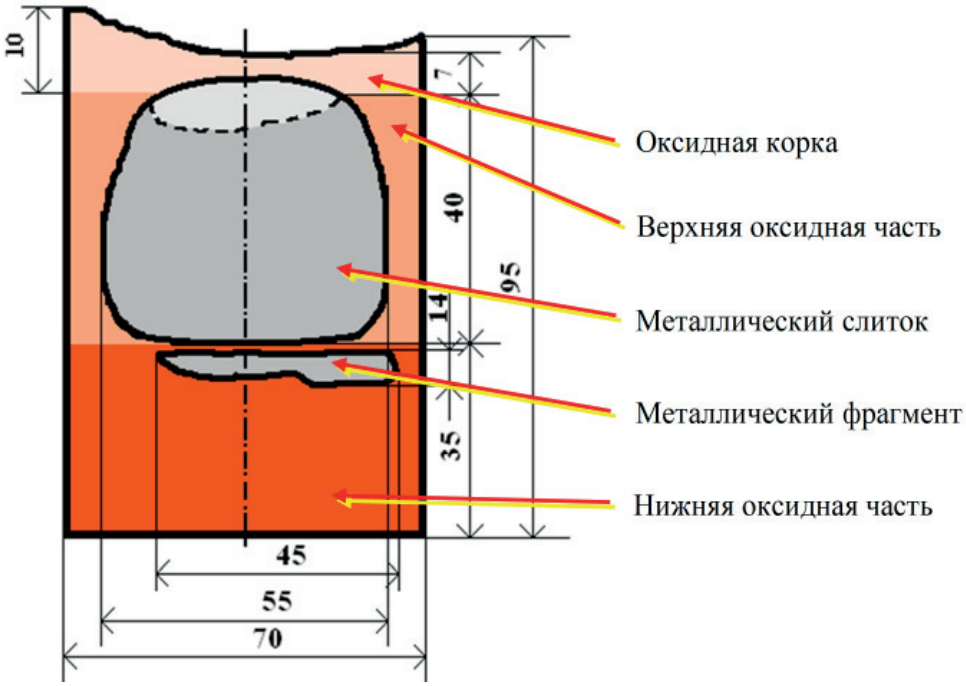


Рис. 4. Схема оксидно-металлического слитка из эксперимента CD2-01(2) [5]

Таким образом, для опыта CD2-01(2) температура верхней поверхности корки составляет 1800 °C, температура нижней поверхности корки – 2350 °C, а её толщина – 7-10 мм, и можно применить зависимости (2) и (3) для определения плотности теплового потока и теплопроводности [29] для этого эксперимента:

$$\frac{Q}{S} = 8.37 \cdot 10^5 \frac{\text{Вт}}{\text{м}^2}; \quad \lambda = 8.4 - 11.9 \frac{\text{Вт}}{\text{м} \cdot \text{К}} \quad . \tag{4}$$

В эксперименте CD2-01(2) была определена удельная на единицу площади мольная скорость окисления, составившая 9.1±6.5 ммоль/(м^{2}с) [5]. При расчете по зависимости (1) в [17] была получена величина этой скорости 76±16 ммоль/(м^{2}с), что много больше величины, определенной экспериментально. Причем эта точка была единственной выпадающей из восьми экспериментальных точек, обобщенных зависимостью (1). Отметим, что в [17] при расчете по зависимости (1) величина теплопроводности была принята, на основании полученных стандартными методами экспериментальных данных [6, 8, 9, 43], равной 2 Вт/(м·К) с неопределенностью ±15 %. Если теперь в зависимости (1) использовать полученную предлагаемым методом величину теплопроводности (4), то величина удельной мольной скорости окисления расплава составит:

$$J_{\text{ox}}^{\text{расчет}} = 18.7 - 12.7 \frac{\text{ммоль}}{\text{м}^2\text{с}} \quad , \tag{5}$$

что находится в существенно лучшем соответствии с экспериментальным значением и косвенно подтверждает надежность нового метода определения теплопроводности.

3.2 Эксперимент CD2-02

В эксперименте CD2-02 после формирования поверхностной корки в условиях окислительной атмосферы (аргон-кислородная смесь с содержанием кислорода 2 об. %) в печь через шахту пирометра подавалась аргон-кислородная смесь с содержанием кислорода 20 об. %. На рис. 5 приведено изменение во времени содержания кислорода на входе и на выходе из печи, а на рис. 6 – изменение во времени вводимой в расплав мощности и показаний пирометра.

Из показаний, приведенных на рис. 6, следует, что в стабильном тепловом режиме средняя температура поверхностной оксидной корки, а также скорость окисления расплава в эксперименте CD2-02 оставались практически постоянными. При этом температура поверхностной корки составляла 1900 °C.

После завершения эксперимента оксидно-металлический слиток извлекли из тигля (схема слитка приведена на рис. 7), и был выполнен его комплексный физико-химический анализ [5].

СЭМ/РСМА анализ показал, что корка на поверхности слитка из эксперимента CD2-02 имеет пористую структуру с множеством трещин. Основной фазой корки являлся твердый раствор $(U, Zr)O_2$. Микроструктура корки имеет сложный характер. На периферии, примыкающей к холодной поверхности тигля, корка преимущественно состоит из металлической компоненты. К ней примыкает область на основе твердого раствора $(U, Zr)O_2$, а в нижней части зафиксирован тонкий слой твердого раствора на основе $(Cr, Fe)_2O_3$. В центральной зоне слитка наблюдается смешанная структура корки, состоящая преимущественно из фазы на основе $(U, Zr)O_2$ и капельных металлических включений, обогащенных никелем. Толщина корки составила 0.8–1.0 мм. Согласно СЭМ/РСМА анализу корка имеет следующий средний состав, в масс.%: 63.1 U, 19.1 Zr, 1.2 Fe, 0.8 Cr, 0.2 Ni, 15.5 O [5]. Расчетные оценки с помощью кода GEMINI/NUCLEA дают температуру на нижней границе корки равную 2 350 °C.

Таким образом, для опыта CD2-02 температура верхней поверхности корки составляет 1 900 °C, температура нижней поверхности корки – 2 350 °C, а ее толщина 0.8–1.0 мм, и можно применить зависимости (2) и (3) для определения плотности теплового потока и коэффициента теплопроводности [29] для этого эксперимента:

$$\frac{Q}{S} = 10.025 \cdot 10^5 \frac{\text{Вт}}{\text{м}^2}; \quad \lambda = 1.8 - 2.2 \frac{\text{Вт}}{\text{м} \cdot \text{К}} \cdot \qquad (6)$$

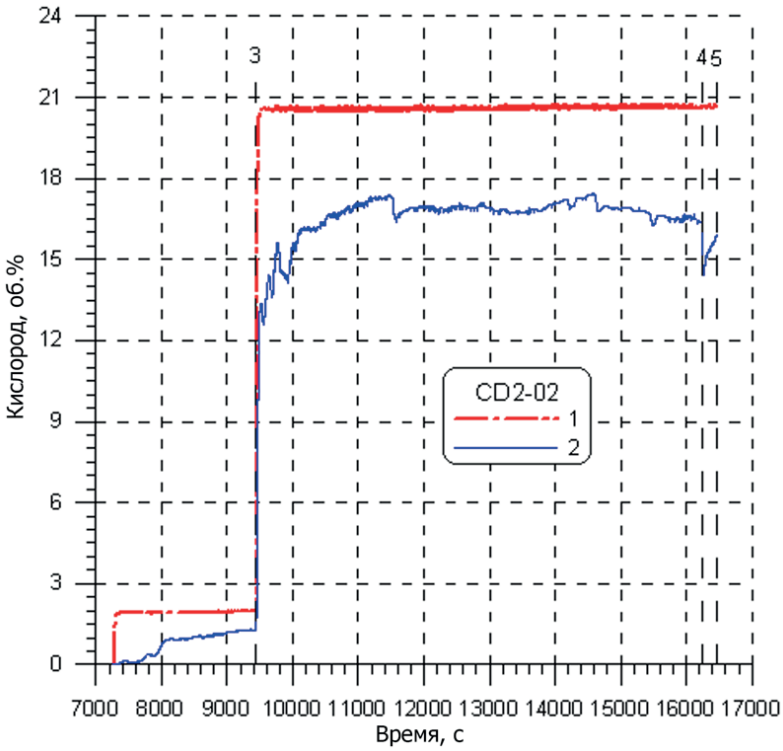


Рис. 5. Показания содержания кислорода на входе и выходе из печи в эксперименте CD2-02 [5]

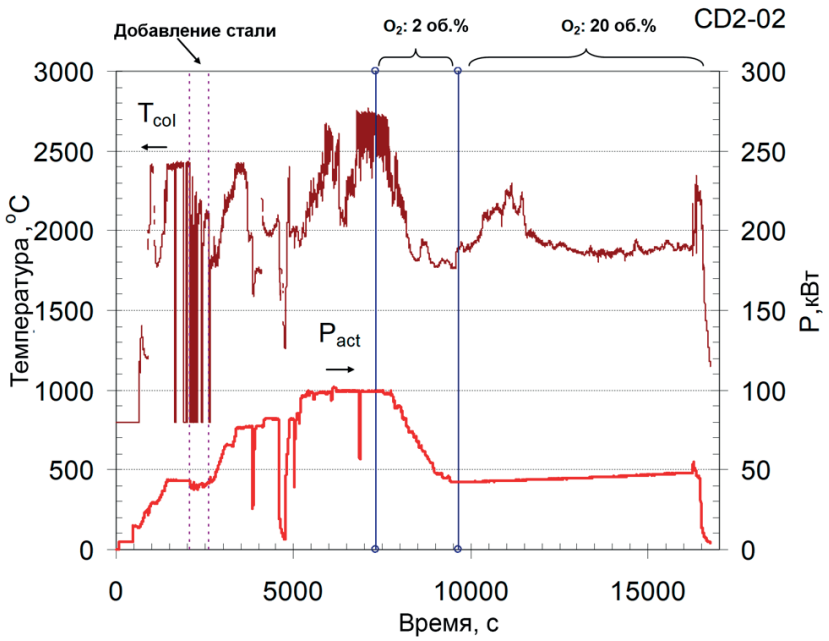


Рис. 6. Показания суммарной активной мощности, вводимой в холодный тигель (P_{act}), и пирометра (T_{col}) в эксперименте CD2-02 [5]

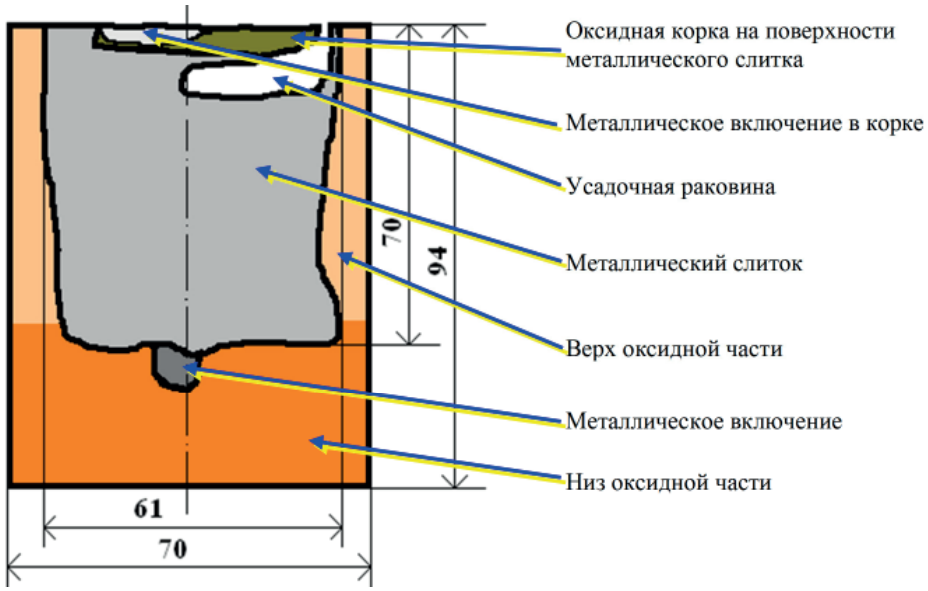


Рис. 7. Схема оксидно-металлического слитка из эксперимента CD2-02 [5]

Можно предположить, что существенно меньшая величина теплопроводности в CD2-02 по сравнению с CD2-01(2) обусловлена много большей долей металла в корке CD2-01(2): соответственно, 15.7 и 2.2 масс. %, что, по-видимому, связано с различными условиями формирования корки в этих экспериментах.

В [5] для эксперимента CD2-02 также была определена удельная на единицу площади мольная скорость окисления, составившая 86±13 ммоль/(м^2 с). С использованием полученного значения λ (6) величина удельной мольной скорости окисления расплава, полученная расчетом по зависимости (1), составляет:

$$J_{ox}^{расчет} = 111 - 88 \frac{ммоль}{м^2\,с}, \qquad (7)$$

и находится в хорошем соответствии с экспериментальными данными.

4. Обсуждение результатов

На рис. 8 приведено сопоставление рассчитанных по зависимости (1) и экспериментальных значений удельной скорости окисления расплава через оксидную корку с учетом корректировки величины теплопроводности корки, определенной новым методом. Можно констатировать, что предложенная в [17] зависимость (1) обобщает все известные экспериментальные данные по окислению расплава кориума в рассмотренных условиях.

Вместе с тем следует учитывать, что только для двух из восьми точек величина теплопроводности корки, используемая в (1), определена новым методом и является представительной. Поэтому для возможного уточнения обобщающей зависимости целесообразно проведение серии экспериментов по окислению расплава с определением теплопроводности предложенным методом в каждом режиме (для каждой опытной точки). Кроме того, нельзя исключить, что характеристики корки, определяющие величину теплопроводности, зависят от типа окислителя и специфики его подвода к поверхности корки, в свою очередь, зависящих от сценария протекания тяжелой аварии. В связи с этим представляется целесообразным расширить, по сравнению с рассмотренными в настоящей работе, условия экспериментов по исследованию окисления расплава кориума, дополнив их сериями опытов в паровой, паровоздушной атмосфере, а также при пленочном кипении воды на поверхности корки.

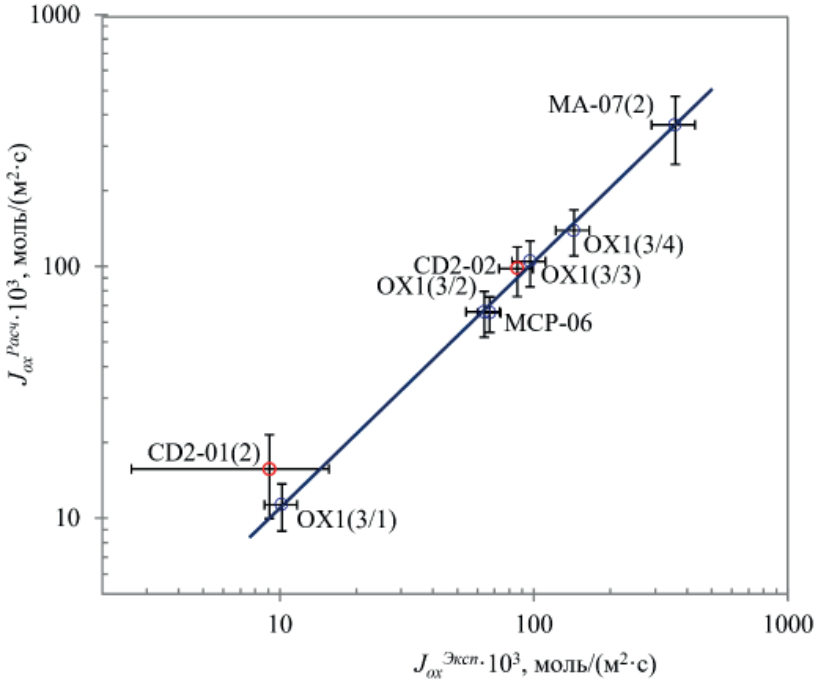


Рис. 8. Сопоставление расчетных ($J_{ox}^{Расч}$) и экспериментальных ($J_{ox}^{Эксп}$) значений удельной скорости окисления расплава через оксидную корку

Заключение

Разработанный метод обеспечивает определение теплопроводности корки, образованной на поверхности металлической жидкости двухжидкостной ванны расплава прототипного кориума, в максимальной степени соответствующей реакторным условиям. Новый метод позволяет уменьшить погрешность известных методов, чем достигается возможность уточнения скорости окисления расплава и повышение достоверности результатов анализа тяжелой аварии на АЭС с ВВЭР на внутрикорпусной стадии развития с применением современных расчетных кодов [44]. Дальнейшее увеличение точности определения теплопроводности новым методом связано с повышением точности измерения толщины корки.

Литература

1. Oxidation kinetics of corium pool / A.A. Sulatsky [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2013. – V. 262. – P. 168-179. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2013.04.025.
2. Oxidation effect on steel corrosion and thermal loads during corium melt in-vessel retention / V.S. Granovsky [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2014. – V. 278. – P. 310–316. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2014.07.034.
3. Oxidation effects during corium melt in-vessel retention / V.I. Almjashev [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2016. – V. 305. – P. 389–399. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2016.05.024.
4. Экспериментальное исследование влияния структуры ванны расплава и поверхностной оксидной корки на кинетику окисления расплава кориума / А.А. Сулацкий [и др.] // Технол. обесп. жизн. цикла ядерн. энергет. устан. – 2019. – 1 (15). – P. 66–80. – eLIBRARY ID: 37643366.
5. Experimental study of oxidic-metallic melt oxidation / A.A. Sulatsky [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2020. – V. 363. – Art. 110618. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2020.110618.
6. Thermo-physical properties of corium: development of an assessed data base for severe accident applications, in: Societe Francaise d'Energie Nucleaire / V.F. Strizhov [et al.] // International Congress on Advances in Nuclear Power Plants – ICAPP 2007, «The Nuclear Renaissance at Work». – 2007. – P. 2692-2699.
7. Thermophysical Properties Database of Materials for Light Water Reactors and Heavy Water Reactors / G. Cognet [et al.] // IAEA Tecdoc-1496, IAEA, Vienna. – 2006. – 404 p.
8. Thermophysical properties of U, Zr-oxides as prototypic corium materials / A. Seibert [et al.] // J. Nucl. Mater. – 2019. – V. 520. – P. 165–177. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2019.04.019.
9. РАСПЛАВ. Удержание расплавленных материалов активной зоны водоохлаждаемых реакторов: международные проекты RASPLAV и MASCA (1994–2006) / под ред. В.Г. Асмолова, А. Ю. Румянцева, В. Ф. Стрижова. – М.: Концерн Росэнергоатом, 2018. – 576 с.
10. *Deem H.W.* Fabrication, characterization and thermal-property measurements of ZrO_2-base fuels ($CaO-UO_2-ZrO_2$ and UO_2-ZrO_2). –Batelle Memorial Institute. – 1966.
11. Melting temperatures and thermal conductivities of corium prepared from UO_2 and Zircaloy-2 / M. Kato [et al.] // Materials Research Society Symposium Proceedings. – 2012. – P. 91-96. – DOI: 10.1557/opl.2012.987.
12. Effect of oxygen-to-metal ratio on properties of corium prepared from UO_2 and zircaloy-2 / S. Hirooka [et al.] // J. Nucl. Mater. – 2013. – V. 437. – P. 130–134. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.01.334.
13. Thermophysical properties of inert matrix fuels for actinide transmutation / C. Ronchi [et al.] // J. Nucl. Mater. – 2003. – V. 320. – P. 54-65. – DOI: 10.1016/S0022-3115(03)00171-5.
14. *Nagase F.* Thermal properties of Three Mile Island Unit 2 core debris and simulated debris / F. Nagase, H. Uetsuka // J. Nucl. Sci. Technol. – 2012. – V. 49. – P. 96-102. – DOI: 10.1080/18811248.2011.636534.
15. SCDAP/RELAP5/MOD 3.3 Code Manual: MATPRO – A Library of Materials Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis / L.J. Siefken [et al.] // NRC Nuclear Regulatory Commission. – 2001.

16. A mechanism for the suppression of a steam explosion in real core melt and water interactions / I.K. Park [et al.] // J. Nucl. Sci. Technol. – 2010. – V. 47. – P. 721–730. – DOI: 10.1080/18811248.2010.9711648.

17. Моделирование окисления расплава активной зоны ядерного реактора при наличии оксидной корки на поверхности расплава / В.Б. Хабенский [и др.] // Журн. Техн. Физ. – 2021. – Т. 91, Вып. 2. – С. 232–239. – DOI: 10.21883/JTF.2021.02.50356.181-20.

18. Окисление расплава системы «сверхстехиометрический кориум – нержавеющая сталь» / Хабенский В.Б. [и др.] // Технол. обесп. жизн. цикла ядерн. энергет. устан. – 2021. – № 1 (23). – С. 62–80. – DOI: 10.52069/2414-5726_2021_1_23_62.

19. Implementation of a spark plasma sintering facility in a hermetic glovebox for compaction of toxic, radiotoxic, and air sensitive materials / V. Tyrpekl [et al.] // Rev. Sci. Instrum. – 2015. – V. 86. – Art 023904. – DOI: 10.1063/1.4913529.

20. Advances in the use of laser-flash techniques for thermal diffusivity measurement / M. Sheindlin [et al.] // Rev. Sci. Instrum. – 1998. – V. 69. – P. 1426-1436. – DOI: 10.1063/1.1148776.

21. Eutectic crystallization in the $FeO_{1.5}$–UO_{2+x}–ZrO_2 system / V.I. Almjashev [et al.] // J. Nucl. Mater. – 2009. – V. 389, № 1. – P. 52-56. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2009.01.006.

22. Heat capacity, thermal conductivity and thermal diffusivity of uranium-americium mixed oxides / O.S. Valu [et al.] // J. Alloy. Comp. – 2014. – V. 614. – P. 144–150. – DOI: 10.1016/j.jallcom.2014.05.083.

23. *Fink J.K.* Thermophysical properties of uranium dioxide / J.K. Fink // J. Nucl. Mater. – 2000. – V. 279. – P. 1-18. – DOI: 10.1016/0022-3115(81)90541-9.

24. NIST-JANAF Themochemical Tables, fourth ed. / M.W. Chase Jr. // J. Phys. Chem. Ref. Data, Monograph 9. – 1998. – P. 1-1951. – DOI: 10.18434/T42S31. – URL: https://janaf.nist.gov/. – Проверено 22.12.2021.

25. Электронный справочник «Термодинамические свойства индивидуальных веществ» ТСИВ. – URL: http://twt.mpei.ac.ru/tthb/2/oivt/IVTANThermo/Rus/index.htm. – Проверено 22.12.2021.

26. База данных «Термические константы веществ» ТКВ. – URL: http://www.chem.msu.ru/cgi-bin/tkv.pl?show=welcome.html/welcome.html. – Проверено 22.12.2021.

27. *Bottomley P.D.* Metallurgical examination of bore samples from the Three Mile Island Unit 2 reactor core / P.D. Bottomley, M. Coquerelle // Nucl. Technol. – 1989. – V. 87. – P. 120–136. – DOI: 10.13182/NT89-A27642.

28. *Brown A.* Analysis of crystalline phases in core bore materials from Three Mile Island Unit 2 / A. Brown, G.J. McIntyre, C. Graslund // Nucl. Technol. – 1989. – V. 87. – P. 137–145. – DOI: 10.13182/NT89-A27643.

29. Способ определения теплопроводности корки кориума / В.Б. Хабенский [и др.] // Патент РФ №2742076. – Приоритет – 20.07.2020. – Опубликован – 02.02.2021.

30. Experimental study of transient phenomena in the three-liquid oxidic-metallic corium pool / V.I. Almjashev [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2018. – V. 332. – P. 31–37. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2018.03.004.

31. *Fischer M.* Impact of B_4C on the Stratification of Molten Steel and BWR-type Core Material under IVR Conditions / M. Fischer, A.A. Sulatsky, E.V. Krushinov // International Congress on Advances in Nuclear Power Plants – ICAPP 2012. – 2012. – Paper 12452.

32. Transient interactions of boron carbide with molten uranium oxide / Ch. Journeau [et al.] // Nucl. Mater. Energy. – 2021. – V. 29. – Art 101078. – DOI: 10.1016/j.nme.2021.101078.

33. Экспериментальное определение точки пространственной инверсии сосуществующих фаз расплава в системе U-Zr-Fe-O-B_4C / Хабенский В.Б. [и др.] // Технол. обесп. жизн. цикла ядерн. энергет. устан. – 2021. – № 4 (26). – С. 53-66. – DOI: 10.52069/2414-5726_2021_4_26_53.

34. Исследования, выполненные на комплексе экспериментальных установок «Расплав» отдела исследований тяжелых аварий ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» /Альмяшев В.И. [и др.] // Технол. обесп. жизн. цикла ядерн. энергет. устан. – 2020. – № 4 (22). – С. 69–89. – eLIBRARY ID: 44757042.

35. *Петров Ю.Б.* Индукционная плавка окислов. – Л.: Энергоатомиздат, 1983. – 104 с.

36. Индукционная плавка кориума в холодном тигле. Оборудование и применение / Д.Б. Лопух [и др.]. – СПб.: Изд-во СПбГЭТУ «ЛЭТИ», 2019. – 172 с.

37. Индукционная плавка кориума и варка стекла в холодном тигле. Свойства и моделирование / Д.Б. Лопух [и др.]. – СПб.: Изд-во СПбГЭТУ «ЛЭТИ», 2021. – 179 с.

38. The IVTANTHERMO-Online database for thermodynamic properties of individual substances with web interface / G.V. Belov [et al.] // J. Phys.: Conf. Ser. – 2018.– V. 946. – Art 012120. – DOI: 10.1088/1742-6596/946/1/012120.

39. Сайт программы Thermo-Calc. – URL: https://thermocalc.com/. – Проверено 22.12.2021.

40. *Cheynet B.* Thermosuite / B. Cheynet, P.Y. Chevalier, E. Fischer // Calphad. – 2002. – V.26, № 2. – P. 167–174. – DOI: 10.1016/S0364-5916(02)00033-0.

41. NUCLEA «propriétés thermodynamiques et équilibres de phases dans les systems d'intérêt nucléaire» / B. Cheynet [et al.] // J. Phys. IV France. – 2004. – V.113. – P. 61–64. – DOI: 10.1051/jp4:20040014.

42. Corium phase equilibria based on MASCA, METCOR and CORPHAD results / S.V. Bechta [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 2008. – V. 238. – P. 2761–2771. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2008.04.018.

43. In-vessel coolability and retention of a core melt / T.G. Theofanous [et al.] // Nucl. Eng. Des. – 1997. – V. 169, Iss. 1-3. – P. 1–48. – DOI: 10.1016/S0029-5493(97)00009-5.

44. Проект «Коды нового поколения» ИБРАЭ РАН. – URL: http://www.ibrae.ac.ru/contents/383/. – Проверено 22.12.2021.

ПРАВИЛА ПОДАЧИ МАТЕРИАЛОВ

для публикации в рецензируемом научно-техническом сборнике «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок»

Все материалы, предназначенные для опубликования в рецензируемом научно-техническом сборнике, должны направляться авторами в электронном виде на адрес foton@niti.ru (с пометкой: в редакцию научно-технического сборника).

В комплект материалов, направляемых в редакцию Сборника, должны входить в электронном виде:

- **текст статьи**, оформленной в соответствии с установленными редколлегией Требованиями к оформлению и содержанию статей, публикуемых в научно-техническом сборнике «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок»;
- **копии документов** о возможности открытого опубликования статьи в сборнике «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок»;
- **«Лицензионный договор»**, заполненный и подписанный всеми соавторами.

Файлы с шаблоном лицензионного договора **(license_agreement.doc)** и требованиями к оформлению статей **(Требования к оформлению.doc)** размещены на сайте **www.niti.ru** в рубрике **«Научно-технический сборник»**.

ТРЕБОВАНИЯ К ОФОРМЛЕНИЮ И СОДЕРЖАНИЮ СТАТЕЙ,

публикуемых в научно-техническом сборнике «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок»

Сборник публикует статьи и краткие сообщения о результатах теоретических и экспериментальных исследований и разработок, выполненных при создании, отработке и эксплуатации объектов с ЯЭУ на всём их жизненном цикле.

В Сборник принимаются статьи для опубликования основных результатов диссертационных работ на соискание ученых степеней доктора и кандидата наук, соответствующие тематике Сборника.

Все статьи, публикуемые в Сборнике, проходят рецензирование. Подготовка рецензий на поступающие для публикации в Сборнике статьи осуществляется независимыми рецензентами на условиях анонимности (для авторов).

Ответственный секретарь редколлегии Сборника организует процедуру рецензирования статей, а также взаимодействие между авторами и рецензентами в соответствии с «Положением об институте рецензирования статей научно-технического Сборника», утверждённым главным редактором и размещенным на интернет сайте **www.niti.ru** в рубрике **«Научно-технический сборник «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок».**

После получения рецензии на статью редакция направляет автору перечень замечаний рецензента, которые должны быть учтены автором при подготовке окончательной версии статьи. После получения замечаний рецензента откорректированный автором вариант статьи направляется в редакцию Сборника в максимально короткие сроки (не более 14 календарных дней). Подготовленный и утвержденный к публикации вариант статьи редакция направляет автору для окончательного согласования.

Тематические рубрики научно-технического сборника

1. Стендовые испытания транспортных ЯЭУ.
2. Исследование динамики и создание технологий испытаний объектов с ЯЭУ.
3. Моделирование и исследование нейтронно-физических и теплогидравлических процессов объектов с ЯЭУ.
4. Технологии создания систем контроля и управления (СКУ) ЯЭУ.
5. Химические технологии обеспечения жизненного цикла ЯЭУ, радиохимические и материаловедческие исследования.
6. Исследование процессов при тяжёлых авариях на объектах атомной энергетики.
7. Влияние объектов атомной энергетики на окружающую среду.
8. Обеспечение экспериментальных исследований.
9. Дискуссионные вопросы развития атомной энергетики.
10. Информационные сообщения.

1. Условия опубликования статей

1.1 Представляемые для публикации статьи на русском языке должны обладать научно-практической актуальностью и новизной, содержать:

- **индекс универсальной десятичной классификации** для научных работ **(УДК)** приводится вместе с аббревиатурой УДК в верхнем левом углу первой страницы (классификационный индекс УДК должен подробно отражать тематику статьи);
- **заглавие** (название статьи на русском и английском языках, с указанием фамилий, и инициалов авторов, наименований и адресов организаций, в которых выполнялась работа);
- **аннотацию** на русском и английском языках (краткое описание цели и задачи проведенного исследования, а также возможности практического применения полученных результатов, что поможет читателю быстрее уяснить суть обсуждаемой проблемы); объём аннотации — 5–10 предложений;
- **ключевые слова** на русском и английском языках (7–10 слов);
- **основной текст** (включая введение в тематику проблемы или постановку задачи, описание методики исследования или экспериментальной части, описание основных результатов исследования, полученных автором с характеристикой их новизны и научно-практической актуальности, выводы);
- **список литературы**, оформленный в соответствии с правилами оформления, представленными ниже.

1.2 Соответствовать правилам оформления.

2. Правила оформления статей

2.1 Научная статья должна иметь ограниченный объём (7–12) страниц формата А4 книжной ориентации, включая таблицы, иллюстрации и список литературы (статьи большего объёма могут быть приняты к публикации по согласованию с Редакцией).

2.2 При форматировании текста статей необходимо придерживаться следующих **требований по оформлению:**

- все поля — по 20 мм.;
- формат страницы — А4 (книжной ориентации);
- шрифт основного текста — Times New Roman, размер шрифта — 12 пт.;
- название статьи пишется полужирным шрифтом **(Строчные, как в предложениях)**, размер шрифта — 16 пт.;
- наименование подразделов статьи пишется полужирным шрифтом **(Строчные, как в предложениях)** размер шрифта — 14 пт.;
- межстрочный интервал — одинарный;
- обязателен отступ первой строки абзаца;
- выравнивание текста по ширине;
- автоматическая расстановка переносов включена;
- нумерация страниц отсутствует;
- рисунки и таблицы располагаются по тексту;
- в подписях к рисункам пишется «Рис.», при ссылке на рисунок в тексте — рис.
- таблицы должны иметь название и нумероваться в порядке упоминания их в тексте арабскими цифрами; название таблицы после номера таблицы; все графы в таблице должны иметь заголовки и разделяться вертикальными линиями, а цифровой материал должен четко соответствовать строкам; сокращения слов в таблицах не допускается; при наличии в тексте одной таблицы с заголовком слово Таблица не пишется, и таблица не нумеруется;
- формулы набираются в редакторе формул «MS Equation», ссылки на формулу приводятся в круглых скобках — (1);
- в качестве разделителя в десятичных дробях используется точка;
- расшифровка физической величины (и других обозначений, например, аббревиатур) должна приводиться при первом упоминании их в тексте;
- количество рисунков, включая их разбивку на подрисунки, не должно превышать 10–12 для оригинальной статьи, 3 — для краткого сообщения;
- авторам следует избегать повторения одних и тех же данных на рисунках, в таблицах и тексте;
- ссылки на литературу приводятся в квадратных скобках — [1];

2.3 При подготовке иллюстраций и графических файлов необходимо придерживаться следующих рекомендаций.

2.3.1 Иллюстрации не должны иметь разрешение ниже 150 dpi. Рекомендуемое разрешение:

- Halftones (color or grayscale) — 300 dpi.
- Bitmap — 600–1200 dpi.

2.3.2 Иллюстрации не должны быть менее 6 см. по ширине (расположение на одну колонку) и более 17 см (на полосу).

2.3.3 Графики, диаграммы, схемы желательно готовить в векторных графических редакторах (CorelDRAW, Adobe Illustrator) и предоставлять в формате той программы, в которой они были выполнены (*.cdr, *.ai), или в формате *.eps. Для остальных иллюстраций желательны форматы *.tif, *.jpg.

2.3.4 Фотографии желательно предоставлять в двух вариантах. Первый — соответствующий оригиналу со всеми надписями и обозначениями; второй — чистый (без текста, обозначений и пр.). Желательный формат файлов (*.tif), (*.jpg).

2.4 В конце статьи помещается Список литературы. Библиографические записи в списке литературы оформляют согласно требованиями ГОСТ Р 7.0.100 –2018 и ГОСТ Р 7.05–2008.

2.5 Библиографические записи в списке литературы приводятся в той же последовательности, что и упоминаются в тексте статьи, или по алфавиту фамилий авторов, или первых слов заглавий документов (библиографические записи произведений авторов-однофамильцев располагают в алфавите их инициалов).

2.6 При наличии в списке литературы на других языках, кроме русского, образуется дополнительный алфавитный ряд.

2.7 Оформленные в соответствии с указанными выше правилами материалы статей пересылаются в редколлегию сборника в виде файла в формате «Microsoft Word». Размещаемые в статье рисунки (схемы, графики), фотографии прилагаются дополнительно в виде отдельных файлов формата *.tif, *.jpg. с требуемым разрешением.

2.8 Совместно с материалами статьи в редакцию авторами высылаются электронные копии документов о возможности открытого опубликования данных материалов в виде статьи в сборнике «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок».

2.9 При возникновении вопросов по подаче материала и его оформлению следует обращаться в редакцию научно-технического сборника.

2.10 **Адрес редакции:** 188540 Сосновый Бор, Ленинградская область, Копорское шоссе д. 72, ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», телефон: 8 (813-69) 6-01-43, факс: 8 (813-69) 2-36-72; **E-mail: foton@niti.ru** — с пометкой «В редакцию научно-технического сборника».

Выпускающий редактор: Крюков Ю.В.

Дизайн и вёрстка: Куликова Е.В.

Подписано в печать 31.01.2022. Бумага офсетная. Гарнитура Таймс. Печать цифровая.
Формат 60×90/8. Усл.-печ. л.11,75. Заказ 41425. Тираж 100 экз.

Отпечатано в Типографии "Грейт Принт"
198095, Россия, Санкт-Петербург, ул. Швецова, д. 12, корп. 2, лит. А, пом. 6-Н, ком. 6
www.great-print.ru

Тел.: +7(812) 622-00-22