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

№ 1 (31) 2023

Сосновый Бор

ТЕХНОЛОГИИ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ЖИЗНЕННОГО ЦИКЛА ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

Периодический рецензируемый научно-технический сборник

№ 1 (31) 2023

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.

ŀ

ЧЛЕНЫ РЕДАКЦИОННОЙ КОЛЛЕГИИ

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

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,	, члкорр. РАН, доктор химических наук, Институт химии силикатов им. И.В. Гребенщикова РАН Санкт-Петербург.				
А.Л. Дмитриев,	ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор.				
О.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,	(выпускающий редактор), 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.В. Родинков, доктор химических наук, профессор, Санкт-Петербургский государственный университет.

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

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

А.А. Сулацкий, кандидат технических наук, ФГУП «НИТИ им. А. П. Александрова».

В.Б. Хабенский, доктор технических наук, профессор, эксперт в области расчетно-экспериментального обоснования безопасности и теплотехнической надежности ЯЭУ.

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) 60546 — отв. секретарь редколлегии.

Факс: 8 (813 69) 23672. E-mail: foton@niti.ru; Интернет сайт: www.niti.ru.

Подписной индекс 43300 в объединенном каталоге «Пресса России».

Научно-технический сборник «Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок» 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 специальностям:

1.4.2. Аналитическая химия (химические науки); 1.4.4. Физическая химия (химические науки);

2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность (технические науки).

При перепечатке ссылка на периодический рецензируемый научно-технический сборник

«Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок» обязательна.

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

NUCLEAR PROPULSION REACTOR PLANTS. LIFE CYCLE MANAGEMENT TECHNOLOGIES

COLLECTION OF PAPERS

№ 1 (31) 2023

Sosnovy Bor

NUCLEAR PROPULSION REACTOR PLANTS. LIFE CYCLE MANAGEMENT TECHNOLOGIES

Collection of papers. Periodical edition

№ 1 (31) 2023

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 Cand. Sc. (Chemistry), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor. V.I. Almjashev, Dr. Sc. (Engineering), Director of the Service Center, JSC Concern Avrora SPA, V.I. Bursuk, Saint Petersburg. Dr. Sc. (Engineering), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor. V.S. Gursky, corresponding member of RAS, Dr. Sc. (Chemistry), Grebenshchikov Silicate Chemistry V.V. Gusarov, Institute of RAS, Saint Petersburg. A.L. Dmitriev, Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor. A.A. Efimov, Dr. Sc. (Engineering), 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, Expert in the field of numerical and experimental analyses for the safety and thermal reliability of nuclear propulsion reactor plants. Assistant Editor, Cand. Sc. (Engineering), Alexandrov Research Institute of Technology, Yu.V. Kriukov. 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.V. Rodinkov, Dr. Sc. (Chemistry), Professor, Saint Petersburg State University. **O.B.** Samoilov, Dr. Sc. (Engineering), Professor, JSC Afrikantov OKBM, Nizhny Novgorod. V.L. Stolyarova, academician of RAS, Dr. Sc. (Chemistry), Grebenshchikov Silicate Chemistry Institute of RAS, Saint Petersburg A.A. Sulatsky, 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 Π No. Φ C77–58865, 28.07.14.

EDITORIAL OFFICE ADDRESS:

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

Tel.: 8 (813 69) 60546 — Assistant Editor. Fax: 8 (813 69) 23672. 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 the main results of doctoral and candidate dissertation studies in the following disciplines:

1.4.2. Analytical Chemistry (Chemical Sciences); 1.4.4. Physical Chemistry (Chemical Sciences);

2.4.9. Nuclear Power Installations, Fuel Cycle, Radiation Safety (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".

Содержание

Выпуск № 1 (31) 2023

Предисловие главного редактора7
Моделирование и исследование нейтронно-физических и теплогидравлических процессов объектов с ЯЭУ Ю.В. Юдов
Модель лучистого теплообмена в расчетном коде КОРСАР
Р.В. Фоменков, А.В. Ельшин, Р.Э. Зинатуллин
Математическая модель выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных ОТВС с топливом дисперсионного типа 16
Химические технологии обеспечения жизненного цикла ЯЭУ, радиохимические и материаловедческие исследования
Е.С. Виноградова, Т.В. Воронина, С.Н. Кузнецова, Ю.В. Цапко
Особенности применения ионохроматографического и комплексонометрического методов для определения общей жесткости в теплоносителях с высоким солержанием пролуктов коррозии
А.А. Сулацкий, В.И. Альмяшев, Е.В. Шевченко, С.А. Витоль, Е.В. Крушинов, С.Ю. Котова, Е.К. Каляго, В.Р. Булыгин, Е.Б. Шуваева, А.В. Тимчук, Е.М. Беляева, М.В. Девяткин
Взаимодействие расплава тяжёлого жидкометаллического теплоносителя с поступающей в его объём волой Часть 1. Эксперимент
В.И. Альмяшев, В.Л. Столярова, Е.В. Крушинов, А.А. Сулацкий, Е.Б. Шуваева, А.В. Тимчук, Е.В. Шевченко, С.Ю. Котова, С.А. Витоль, Е.К. Каляго, В.Р. Булыгин, Е.М. Беляева, И.Е. Арлашкин, С.Н. Перевислов, Д.П. Данилович, В.Б. Хабенский
Исследование высокотемпературного взаимодействия материалов, содержащих МАХ-фазы, с химически прототипным расплавом активной зоны ВВЭР 60
Информация для авторов
Правила подачи материалов в редакцию 72

Contents*

Issue № 1 (31) 2023
Chief editor's foreword 7
Modeling and research of neutron and thermal-hydraulic processes in propulsion reactor plants <i>Yu.V. Yudov</i>
Radiation heat transfer model in KORSAR computer code
R.V. Fomenkov, A.V. Elshin, R.E. Zinatullin
A mathematical model for the release of long-lived gaseous fission products from leaking spent dispersion fuel assemblies
Use of chemical technologies in propulsion reactor plant life cycle management, radiochemical and material research
E.S. Vinogradova, T.V. Voronina, S.N. Kuznetsova, Y.V. Tsapko
Features of the use of ionochromatographic and complexometric methods for determining the total hardness in coolants with a high content of corrosion products
Research of severe accidents in nuclear A.A. Sulatsky, V.I. Almjashev, E. V. Shevchenko, S.A. Vitol, E.V. Krushinov, S.Yu. Kotova, E. K. Kalyago, V. R. Bulygin, E.B. Shuvaeva, A.V. Timchuk, E.M. Belyaeva, M.V. Deviatkin
Interaction of molten heavy liquid metal coolant with inflow water Part I. Experiment
V.I. Almjashev, V.L. Stolyarova, E.V. Krushinov, A.A. Sulatsky, E.B. Shuvaeva, A.V. Timchuk, E.V. Shevchenko, S.Yu. Kotova, S.A. Vitol, E.K. Kalyago, V.R. Bulygin, E.M. Belyaeva, I.E. Arlashkin, S.N. Perevislov, D.P. Danilovich, V.B. Khabensky
Investigation of high temperature interaction between materials containing MAX phases and chemical prototype of VVER core melt
Information for authors Submission procedure

*The article's Conclusions section in English is placed at the end of the article, right before the Acknowledgements (if any) or List of References.

Предисловие главного редактора

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

В рубрике «Моделирование и исследование нейтронно-физических и теплогидравлических процессов объектов с ЯЭУ» публикуются статьи актуальные для оценки состояния тепловыделяющих сборок в активной зоне ядерного реактора.

В статье «Модель лучистого теплообмена в расчетном коде КОРСАР» приведены результаты численного моделирования лучистого теплообмена в расчетном коде КОРСАР для реалистичной оценки температурного состояния тепловыделяющих сборок в активной зоне ядерного реактора в аварийных режимах с течью теплоносителя из первого контура во второй.

В статье «Математическая модель выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных ОТВС с топливом дисперсионного типа» представлена разработанная авторами математическая модель для анализа результатов внереакторной дефектации негерметичных ОТВС на специализированном стенде.

В рубрике «Химические технологии обеспечения жизненного цикла ЯЭУ, радиохимические и материаловедческие исследования» публикуется статья «Особенности применения ионохроматографического и комплексонометрического методов для определения общей жесткости в теплоносителях с высоким содержанием продуктов коррозии». В статье приведены результаты применения широко распространенных в атомной энергетике методов ионной хроматографии и комплексонометрического титрования для определения общей жесткости в технологических водных средах ядерных реакторов с высоким содержанием продуктов коррозии. На модельных системах изучены особенности влияния продуктов коррозии на результаты измерений комплексонометрическим методом. Приведены результаты сравнения возможностей двух методов применительно к решаемой задаче. Определены направления перспективных исследований по совершенствованию данных физико-химических методов при определении общей жесткости в водных теплоносителях.

В рубрике «Исследование процессов при тяжелых авариях на объектах атомной энергетики» публикуются статьи с результатами экспериментального исследования высокотемпературного взаимодействия тяжёлого жидкометаллического теплоносителя с водой при аварии с разрывом трубки парогенератора и результаты исследования высокотемпературного взаимодействия Качестве материала оболочек твэлов, с химически прототипным расплавом активной зоны ядерного реактора.

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

The

В.А. Василенко

Chief editor's foreword

The 31st issue of the periodically published peer-reviewed collection of papers "Nuclear propulsion reactor plants "Nuclear propulsion reactor plants. Life cycle management technologies" continues publication of papers and information in the subject area of interest.

Under the subject heading "Modeling and research of neutron and thermal-hydraulic processes in nuclear propulsion reactor plants", the following papers important for assessing the condition of fuel assemblies in nuclear reactor cores are published:

"Radiation heat transfer model in KORSAR computer code". The paper presents results of radiation heat transfer numerical simulation in the KORSAR computer code for realistically assessing the temperature condition of fuel assemblies in nuclear reactor cores under primary to secondary leak scenarios.

"A mathematical model for the release of long-lived gaseous fission products from leaking spent dispersion fuel assemblies". The paper's authors have developed a mathematical model that is used to analyze results of ex-core testing of spent fuel assemblies for leaks carried out in a special-purpose setup.

Under the subject heading "Chemical technologies in propulsion reactor plant life cycle management, radiochemical and material research":

"Using of ion chromatographic and complexometric methods for determining the total hardness in coolants with a high content of corrosion products". Ion chromatography and complexometric titration are widely used in nuclear industry. The paper presents results of employing these methods to determine the total hardness of nuclear reactor cooling water with high content of corrosion products. Model systems are used to investigate the influence of corrosion products on measurement results obtained with the complexometric method. The capabilities of both methods as applied to the mentioned measurements are compared. The authors have defined advanced research directions for improving the capability of the above physicochemical methods to determine the total hardness of water coolants.

Under the subject heading "Research of severe accidents in nuclear":

The papers presenting results of an experimental study on the high temperature interaction between molten heavy liquid metal coolant and water in a steam generator tube rupture accident and results of an experimental investigation in the high temperature interaction between MAX phases as candidate materials for fuel cladding and chemical prototype of nuclear reactor core melt.

Under the subject heading "Information for authors":

References to the Procedure for submitting manuscripts to the collection of papers "Nuclear propulsion reactor plants. Life cycle management technologies".

Prof. Dr. V.A. Vasilenko

Alton

Chief Editor of the collection of papers "Nuclear propulsion reactor plants. Life cycle management technologies", Academic Director of FSUE "Alexandrov NITI. УДК 621.039

DOI:10.52069/2414-5726 2023 1 31 9

Модель лучистого теплообмена в расчетном коде КОРСАР

Ю.В. Юдов

ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия

Аннотация

В статье представлена модель лучистого теплообмена с поверхностей теплопроводящих конструкций функционального наполнения теплогидравлического расчетного кода КОРСАР. Модель учитывает два способа поглощения испускаемой с поверхностей конструкций лучистой энергии: омываемым их двухфазным потоком и поверхностями соседних теплопроводящих конструкций. Приведены результаты тестирования модели на задаче с обогреваемым стержнем, расположенным в центре охлаждаемой снаружи трубы, при дисперсном режиме течения двухфазной среды между конструкциями.

Ключевые слова: расчетный код КОРСАР, теплогидравлика, лучистая энергия, тепловой поток.

Radiation heat transfer model in KORSAR computer code

Yu.V. Yudov

¹FSUE "Alexandrov NITI", Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia

Abstract

The paper presents a model of heat transfer from the surfaces of heat conduction structures in the functionality of the KORSAR thermal-hydraulic computer code. The model accounts for two absorbers of radiation energy emitted by the surfaces of heat conduction structures: two-phase flow over these structures and the surfaces of neighboring heat conduction structures. The model was tested to solve the problem where a heated rod was in the center of an externally cooled pipe with two-phase dispersed flow around the structures. The testing results are presented.

Key words: KORSAR computer code, thermal hydraulics, radiation energy, heat flux.

Введение

С 1995 года во ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» ведется разработка системного теплогидравлического кода КОРСАР [1]. Две версии кода аттестованы в надзорных органах для расчетного обоснования безопасности реакторов типа ВВЭР [2] и судовых ядерных энергетических установок [3]. Функциональное наполнение кода включает разнообразные модели конвективного теплообмена двухфазного потока с теплопроводящими конструкциями (ТК) [4].

В аварийных режимах с течью теплоносителя из первого контура, особенно в режимах с гильотинным разрывом трубопровода холодной нитки, при закризисном теплообмене в активной зоне на стадии повторного залива для реалистичной оценки температурного состояния тепловыделяющих сборок необходимо учитывать лучистую энергию с поверхностей горячих тепловыделяющих элементов (твэлов). Энергия этого излучения частично поглощается двухфазным теплоносителем, частично передается и поглощается на поверхностях соседних конструкций (твэлов, направляющих каналов стержней системы управления и защиты, выгородки реактора и т.д.).

В статье представлены описание и результаты тестирования модели лучистого теплообмена ТК, учитывающей изложенные выше два способа поглощения энергии излучения.

Лучистый теплообмен между теплопроводящими конструкциями

Лучистый теплообмен (теплообмен излучением) между поверхностями теплопроводящих конструкций рассчитывается на основе известных угловых коэффициентов взаимной видимости поверхностей [5, 6]. В коде КОРСАР теплообмен излучением моделируется в рамках элемента HCS (*Теплопроводящая конструкция*) в предположении, что теплообмен осуществляется только между поверхностями ячеек различных теплопроводящих конструкций, расположенными в одном слое (уровне), т.е. их тепловое взаимодействие с поверхностями ячеек других слоев отсутствует.

Поток эффективного излучения каждой i-ой поверхности расчетной ячейки ТК, участвующей в теплообмене излучением, складывается из потока собственного излучения и части потоков эффективного излучения других поверхностей, отраженных данной поверхностью:

$$R_i F_i = E_i F_i + r_i \sum_{j=1}^{NS} R_j \varphi_{ij} F_j, \quad i = \overline{1, NS},$$
(1)

где

R – плотность потока эффективного излучения;

F – площадь поверхности ТК;

Е – плотность потока собственного излучения;

- $r = 1 \varepsilon$ отражательная способность;
- ε степень черноты;

NS - общее количество поверхностей, участвующих в лучистом теплообмене;

 ϕ_{ij} – угловой коэффициент видимости і-й поверхности с j-й поверхности ТК.

Для сохранения энергии при ее передаче излучением в замкнутой системе угловые коэффициенты видимости ϕ_{ii} должны удовлетворять аксиоме замкнутости:

$$\sum_{i=1}^{NS} \varphi_{ij} = 1, \qquad j = \overline{1, NS}$$
(2)

и теореме взаимности:

$$\varphi_{ij}F_i = \varphi_{ji}F_j, \quad j = \overline{1, NS} \quad . \tag{3}$$

Используя теорему взаимности (3), систему уравнений (1) можно записать относительно плотностей потоков:

$$\mathbf{R}_{i} = \mathbf{E}_{i} + \mathbf{r}_{i} \sum_{j=1}^{NS} \mathbf{R}_{j} \boldsymbol{\varphi}_{ij}, \quad \mathbf{i} = \overline{\mathbf{1}, NS} \quad , \tag{4}$$

в которой φ_{ij} является угловым коэффициентом видимости j-й поверхности с i-й поверхности (транспонирование исходной матрицы φ_{ij}). Входящие в систему уравнений (4) коэффициенты φ_{ii} задаются в файле исходных данных для расчета.

Плотность потока собственного излучения і-й поверхности представляется следующим образом:

$$E_i = \varepsilon_i \sigma_B T_i^4 , \qquad (5)$$

где T_i , ϵ_i – температура и степень черноты і-й поверхности, соответственно, σ_B – постоянная Стефана-Больцмана.

Система линейных алгебраических уравнений (4) записывается в матричном виде:

$$\mathbf{AR} = \mathbf{B},\tag{6}$$

где $\mathbf{R} = (\mathbf{R}_1, \dots, \mathbf{R}_{NS})$ – вектор неизвестных, $\mathbf{B} = (\mathbf{B}_1, \dots, \mathbf{B}_{NS})^T$ – вектор правых частей ($\mathbf{B}_i = \mathbf{E}_i$), А – матрица коэффициентов размерностью NS×NS, элементы которой имеют вид:

$$a_{ij} = -r_i \phi_{ij}, \quad \text{если } i \neq j;$$

$$a_{ii} = 1 - r_i \phi_{ii}, \quad \text{если } i = j.$$
(7)

Плотность теплового потока, отводимого от і-й поверхности к другим поверхностям слоя в процессе теплообмена излучением, определяется по соотношению:

$$\widetilde{q}_i = R_i - \sum_{j=1}^{NS} R_j \varphi_{ij} .$$
(8)

Лучистый теплообмен с двухфазным потоком

В теплогидравлической двухжидкостной модели кода КОРСАР рассчитываются плотности тепловых потоков с поверхности і-й ТК к фазам p = f,g (f – жидкость, g – пар) омывающей среды: ,

$$q_{p,i} = \alpha_{p,i} \left(T_i - T_{p,i} \right), \tag{9}$$

где $\alpha_{p,i}$ – коэффициенты теплообмена, $T_{p,i}$ – температура фаз (определяет температурный напор).

Потоки (9) используются в источниковых членах уравнений сохранения массы и энергии двухжидкостной модели [7]. Суммарная плотность теплового потока записывается в следующем виде:

$$q_{i} = \sum_{p} q_{p,i} = \alpha_{i} (T_{i} - T_{c,i}),$$
(10)
$$\alpha_{i} = \sum_{p} \alpha_{p,i}, \ T_{c,i} = \sum_{p} \alpha_{p,i} T_{p,i} / \alpha_{i}.$$

где из (9)

Соотношение (10) задает граничное условие третьего рода при решении уравнения теплопроводности в ТК.

В граничном условии дополнительно учитывается поток излучения (8):

р

$$q_i^b = q_i + \widetilde{q}_i = \alpha_i \left(T_i - T_{c,i} \right) + \widetilde{q}_i.$$
⁽¹¹⁾

В закризисных режимах теплообмена со стенкой (пленочное кипение и дисперсный режим), в которых температура поверхностей ТК может достигать высоких значений, моделируется поглощение средой энергии излучения. Рассчитываются плотности тепловых потоков лучистого теплообмена поверхностей ТК с фазами q^r_{p,i} и добавляются к конвективным тепловым потокам в (9).

При пленочном кипении:

$$q_{f,i}^{r} = \varepsilon_{i} \sigma_{B} (T_{i}^{4} - T_{s}^{4}) = \alpha_{f,i} (T_{i} - T_{s}),$$

$$q_{g,i}^{r} = 0.$$
(12)

В дисперсном режиме [5]:

$$q_{f,i}^{r} = (1 - \varphi_{g}) \cdot \varepsilon_{i} \sigma_{B} (T_{i}^{4} - T_{s}^{4}) = \alpha_{f,i} (T_{i} - T_{s}),$$

$$q_{g,i}^{r} = \varphi_{g} \frac{\varepsilon_{g} \varepsilon_{i}}{\varepsilon_{i} + \varepsilon_{g} (1 - \varepsilon_{i})} \sigma_{B} (T_{i}^{4} - T_{g}^{4}) = \alpha_{g,i} (T_{i} - T_{g}).$$
(13)

В (12), (13) T_s – температура насыщения, T_g – температура пара, ϕ_g – объемное паросодержание, ϵ_g – степень черноты пара. Жидкая фаза полагается абсолютно черной.

Сопряженный лучистый теплообмен

Плотности потоков (12), (13) можно выразить в общем виде следующим образом:

$$q_{p,i}^r = K_{p,i}E_i - E_{p,i},$$
 (14)

где $E_{p,i} = K_{p,i} \epsilon_i \sigma_B T_p^4$ (для жидкой фазы $T_f = T_s$) – плотность потока излучения от р-й фазы среды, поглощенная поверхностью i-й TK, $K_{f,i} = 1$ либо $K_{f,i} = 1 - \phi_g$, соответственно, для пленочного кипения и дисперсного режима, $K_{g,i} = \phi_g \epsilon_g / (\epsilon_i + \epsilon_g (1 - \epsilon_i))$.

С учетом лучистого теплообмена с двухфазной средой система уравнений для плотности потоков эффективного излучения с поверхностей ТК (4) переписывается в виде:

$$R_{i} = E_{i} - \sum_{p} E_{p,i} - \sum_{p} q_{p,i}^{r} + r_{i} \sum_{j=1}^{NS} \varphi_{ij} R_{j} \qquad (15)$$

Член $E_i - \sum_p E_{p,i}$ в (15) представляет плотность энергии результирующего излучения с

поверхностей ТК к двухфазному потоку [5], член $\sum_{p} q_{p,i}^{r}$ моделирует поглощение энергии

результирующего излучения в среде при передаче ее другим ТК.

Вектор правых частей системы (6) в этом случае модифицируется:

$$B_{i} = E_{i} - \sum_{p} E_{p,i} - \sum_{p} q_{p,i}^{r} .$$
(16)

Результаты тестирования модели

С целью тестирования модели лучистого теплообмена была решена тестовая задача, расчетная схема для которой приведена на рис. 1. Рассматривается вертикальный кольцевой канал с одной расчетной ячейкой, образованный двумя теплопроводящими конструкциями. Канал на выходе закрыт непроницаемым соединением, а на входе связан с граничной ячейкой. В граничной ячейке фиксировалось давление 10⁵ Па. В канал с помощью источника массы

подается жидкость при температуре насыщения. Длина канала составляет 0.3 м. Диаметр первой конструкции равен 0.01 м. Вторая конструкция имеет внутренний диаметр 0.1 м и толщину 0.005 м. В первой теплопроводящей конструкции задано энерговыделение 5000 Вт, а снаружи второй теплопроводящей конструкции использовалось граничное условие третьего рода с коэффициентом теплообмена 100 Вт/(м² K) и температурой окружающей среды 373.15 К.

Степень черноты поверхностей ТК $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 1$. Степень черноты паровой фазы $\varepsilon_g = 0.2$.

Угловые коэффициенты видимости для задачи задаются следующим образом: $\phi_{1,1} = 0$, $\phi_{1,2} = 1$,

 $\varphi_{2,1} = F_1/F_2$, $\varphi_{2,2} = 1 - \varphi_{2,1}$.



Рис. 1 – Расчетная схема для тестовой задачи

Моделируемый процесс можно разделить на две стадии. На первой стадии расход подаваемой жидкости равен нулю. На второй стадии происходит линейное по времени за 100 с увеличение расхода до значения 0.1 кг/с. Изменения по времени отдельных параметров в рассматриваемой задаче показаны на рис. 2.

На первой стадии в стационарном состоянии среда в канале представляет собой неподвижный перегретый пар ($T_g = 1089$ K). Температуры поверхностей ТК: $T_1 = 1783$ K, $T_2 = 880$ K.

Первая поверхность излучает на вторую поверхность тепловой поток $~\widetilde{q}_1F_1=-\widetilde{q}_2F_2=4015~Br$,

что соответствует 80 % от мощности энерговыделения в ней. Соответственно к пару передается тепловой поток $q_1F_1 = 985$ Вт (20 % от мощности энерговыделения), который отбирается

поверхностью второй ТК. Причем, доля лучистого теплообмена в этих потоках составляет около 94 %, 87 % для первой и второй поверхностей, соответственно. В окружающую среду через вторую ТК уходит тепловой поток, равный мощности энерговыделения в первой ТК.



Рис. 2 – Изменение параметров в тестовой задаче:



На второй стадии с 1000 с начинается увеличение расхода жидкости. В канале реализуется дисперсный режим течения. Объемное влагосодержание устанавливается на уровне 0.0111. Капли вследствие гравитационных сил падают в граничную ячейку со скоростью 1.2 м/с. Сгенерированный пар удаляется в граничную ячейку со скоростью 0.2 м/с. На второй стадии

часть энергии, выделяемой в стержне (1447 Вт), передается двухфазному потоку и уносится в граничную ячейку. Поэтому в окружающую среду уходит тепловой поток, меньший на эту величину. Температура пара уменьшается до 606 К, несмотря на увеличение поглощенной им энергии излучения с поверхностей ТК, поскольку значительная часть этой энергии расходуется на испарение капель. Причем, если на первой стадии процесса пар переизлучал лучистую энергию на поверхность второй ТК, то на второй стадии поглощает ее с этой поверхности. Тепловые потоки лучистого теплообмена, поглощенные каплями на испарение, незначительные и составляют 55 Вт и 16 Вт с первой и второй поверхностей, соответственно.

Заключение

Разработана модель лучистого теплообмена в замкнутой системе: теплопроводящие конструкции и двухфазный теплоноситель. Она позволяет рассчитывать послойно обмен лучистой энергией в системе и базируется на использовании угловых коэффициентов взаимной видимости поверхностей. Перенос лучистой энергии между поверхностями конструкций в модели учитывает ее поглощение в двухфазной среде.

Приведены результаты тестирования программной реализации модели в расчетном коде КОРСАР. Продемонстрировано соблюдение балансов энергии излучения и тепловой энергии в замкнутой системе.

Conclusion

A model is developed for radiation heat transfer in a closed system: heat conduction structures and two-phase coolant. The model allows for a layer-by-layer calculation of the exchange of radiation energy in the system and is based on using the angular coefficients of mutual visibility of the surfaces. Transfer of radiation energy between the surfaces of structures in the model accounts for the energy absorption in a two-phase fluid.

Testing results of the model that is implemented as a program in the KORSAR code are presented. Radiation energy and heat energy balances in closed system are shown.

Литература

- КОРСАР теплогидравлический расчетный код нового поколения для обоснования безопасности АЭС с ВВЭР / Ю.А. Мигров, С.Н. Волкова, Ю.В. Юдов, И.Г. Данилов, В.Г. Коротаев, В.В. Кутьин, Б.Р. Бондарчик, Д.В. Бенедиктов // Теплоэнергетика. – 2001. – № 9. – С. 36–49.
- 2. КОРСАР/ГП: аттестационный паспорт программы для электронных вычислительных машин № 537 от 28.12.2021. Федеральная служба по экологическому, технологическому и атомному надзору (Ростехнадзор).
- 3. Программное средство КОРСАР/ВR: аттестационный паспорт программного средства № 355 от 17.04.2014. Федеральная служба по экологическому, технологическому и атомному надзору (Ростехнадзор).
- 4. *Юдов Ю.В.* Замыкающие соотношения теплогидравлической модели расчетного кода КОРСАР / Ю.В. Юдов, С.Н. Волкова, Ю.А. Мигров Ю.А. // Теплоэнергетика. 2002. № 11. С. 22–29.
- 5. *Михеев М.А.* Основы теплопередачи / М.А. Михеев, И.М. Михеева. М.: Энергия, 1977. 344 с.
- 6. RELAP5/MOD3.3, Code Manual, Volume I: Code Structure, System Models and Solution Methods // NUREG/CR-5535/Rev1-V1. Idaho. 2001.
- 7. *Юдов Ю.В.* Двухжидкостная модель нестационарной контурной теплогидравлики и ее численная реализация в расчетном коде КОРСАР // Теплоэнергетика. 2002. №11. С. 17–21.

УДК 621.039.548

DOI:10.52069/2414-5726 2023 1 31 16

Математическая модель выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных ОТВС с топливом дисперсионного типа

Р.В. Фоменков¹, А.В. Ельшин^{1,2}, Р.Э. Зинатуллин^{1,2}

¹ ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия ² Институт Ядерной Энергетики, филиал Санкт-Петербургского политехнического университета им. Петра Великого, г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия

Аннотация

В статье представлена разработанная авторами математическая модель выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок с топливом дисперсионного типа, необходимая для анализа результатов их внереакторной дефектации. Зависимости, связывающие размеры дефектов твэлов со скоростью выхода газообразных продуктов деления, получены на основе разработанной математической модели за счёт перехода от фактических параметров (температуры, коэффициента диффузии, времени дефектации и т.д.) к некоторым «эффективным» параметрам.

Предложены алгоритмы определения «эффективных» параметров модели по результатам дефектации облучённых (отработавших) тепловыделяющих сборок (ОТВС) без проведения дополнительных экспериментальных исследований. «Эффективные» параметры позволяют проводить сравнение результатов дефектации ОТВС, выполненной за различное время и при различных начальных условиях. Для уменьшения погрешности определения параметров дефектов ОТВС предложен критерий отбраковки экспериментальных результатов, полученных в ходе дефектации для нестационарных условий (т.е., в ходе изменения температуры топлива).

Ключевые слова: активная зона, газообразные продукты деления, дефектация, дисперсионное топливо, математическая модель, разгерметизация, тепловыделяющие элементы, транспортные ядерные энергетические установки.

A mathematical model for the release of long-lived gaseous fission products from leaking spent dispersion fuel assemblies

R.V. Fomenkov¹, A.V. Elshin^{1, 2}, R.E. Zinatullin^{1, 2}

¹FSUE "Alexandrov NITI", Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia

²Institute of Nuclear Power Engineering, Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia

Abstract

The paper's authors have developed a mathematical model that describes the release of longlived gaseous fission products from leaking dispersion fuel assemblies. The model is useful for analyzing the results of ex-core testing of the assemblies. Based on the developed model, dependencies are obtained that correlate a fuel leak size with release rate of gaseous fission products by applying "effective" parameters instead of real ones (temperature, diffusion coefficient, leak test time, etc.) Algorithms are suggested to determine "effective" model parameters from the results of testing of irradiated (spent) fuel assemblies without conducting additional experimental studies. "Effective" parameters allow for comparison among results of spent fuel assembly leak tests carried out with different time durations and different boundary conditions. To reduce the error in estimation of spent fuel assembly damage parameters, a criterion is proposed for rejecting experiment results obtained during leak testing under transient conditions (i.e. when fuel temperature changed).

Key words: core, gaseous fission products, leak testing, dispersion fuel, mathematical model, leaking, fuel elements, nuclear propulsion reactor plants.

Введение

После завершения реакторных испытаний твэлов активных зон (а.з.) транспортных ядерных энергетических установок (ЯЭУ) выполняются материаловедческие исследования ОТВС. Из всей совокупности облучённых сборок для последующих внереакторных исследований выбираются наиболее представительные [1], что связано с высокой стоимостью работ. Выбор осуществляется по результатам контроля герметичности оболочек (КГО) твэлов с применением различных методов поиска дефектов (дефектация ОТВС).

Дефекты твэлов представляют собой физические повреждения материала их оболочек в виде трещин различного размера – от микродефектов (газовая неплотность) до макротрещин, допускающих непосредственный контакт топлива с теплоносителем. Так, для твэлов контейнерного типа с оксидным топливом, эксплуатирующихся на атомных станциях с реакторами типа ВВЭР (водо-водяной энергетический реактор), негерметичные ОТВС классифицируются либо как «газонеплотные», либо «имеющие контакт топлива с теплоносителем» [2]. Согласно данным работы [3] размер дефекта, соответствующий «газонеплотному» твэлу, варьируется от 7 до 35 мкм. При контакте топлива с теплоносителем размер дефекта может достигать 1000 мкм.

При контроле герметичности облучённых сборок с топливом дисперсионного типа хорошо зарекомендовал себя «сухой» метод с нагревом ОТВС в изолированном объёме герметичной испытательной камеры (ГИК) специализированного стенда дефектации. В процессе дефектации с нагревом сборок до 150 °С могут быть идентифицированы трещины в оболочках твэлов площадью от 5 мм² [4]. Объемная активность ⁸⁵Kr в измерительном контуре стенда дефектации при указанных размерах дефектов находится на уровне фоновых показаний используемой радиометрической аппаратуры.

Для обеспечения требуемой достоверности результатов дефектации после обнаружения негерметичной сборки, как правило, выполняются повторные измерения. Имеющийся опыт дефектации свидетельствует, что при повторном нагреве ОТВС фиксируется значение скорости выхода ⁸⁵Kr из топлива в несколько раз ниже, чем при первичных измерениях. На выход радионуклида из дефектов влияют как скорость нагрева ОТВС, так и время её предварительного нагрева, что затрудняет интерпретацию полученных результатов.

Анализ литературных данных свидетельствует, что активность газообразных продуктов деления (ГПД), поступающих из негерметичных твэлов, напрямую зависит от размеров дефектов (площади открытой поверхности топливного образца), включая открытые поры, а также коэффициента диффузии нуклида в рассматриваемой среде (который, в свою очередь, зависит от температуры, степени выгорания и окисления, фактического состояния топливной матрицы).

Активность ГПД, поступающих из дефектов, может быть измерена на стенде дефектации средствами радиометрического контроля, накопление ГПД в топливе – оценена расчётным

методом. Зная коэффициент диффузии ГПД и площадь открытой поверхности топлива, включая площадь поверхности открытых пор, можно оценить суммарную площадь дефекта оболочки негерметичного твэла.

1. Оценка коэффициента диффузии ГПД в топливе различного типа по данным литературных источников

В процессе работы ЯЭУ на мощности в негерметичных твэлах а.з. под действием облучения, а также при их взаимодействии с теплоносителем, происходит изменение характеристик диффузионной среды. По мере выгорания топлива изменяется его структура, меняется степень окисления топлива (стехиометрия) и, следовательно, меняются коэффициенты диффузии ГПД в топливе. Для определения влияния указанных факторов на значение коэффициента диффузии рассмотрим результаты исследований, выполненных различными авторами с облучённым оксидным и дисперсионным ядерным топливом.

Согласно [5], зависимость коэффициента диффузии ГПД в оксидном топливе от температуры *T* (при *T* < 1381 K) характеризуется экспоненциальной зависимостью:

$$D = 1.51 \cdot 10^{-13} \cdot \exp(-9508/T),$$

где

D – коэффициент диффузии, см²/с;

Т – температура топлива, К.

В работе [6] при T < 1073 К рекомендуется использовать значение коэффициента диффузии $D = 10^{-19} \,\mathrm{cm}^2/\mathrm{c}.$

В экспериментах по изучению выхода из негерметичных твэлов короткоживущих изотопов криптона и ксенона при температуре 1400-1500 °C установлено, что коэффициенты диффузии для ГПД находятся в диапазоне (0.4 – 3.0) · 10⁻¹⁵ см²/с [7].

Разброс данных по значениям коэффициента диффузии ГПД в оксидном топливе представлен и в работе [8] (см. табл. 1).

Таблица 1

Результаты измерения коэффициентов диффузии ГПД (*D*) в оксидном топливе в зависимости от температуры [8]

Диапазон температур топлива, К	<i>D</i> , см²/с
225 - 1400	$1 \cdot 10^{-17} - 5 \cdot 10^{-15}$
300 - 1400	$2 \cdot 10^{-17} - 1 \cdot 10^{-14}$
950 - 1700	$4 \cdot 10^{-17} - 6 \cdot 10^{-11}$
1000 - 1800	$1 \cdot 10^{-16} - 1 \cdot 10^{-11}$
1000 - 2000	$5\cdot 10^{-18} - 1\cdot 10^{-12}$
1065 - 1300	$3 \cdot 10^{-15} - 1 \cdot 10^{-12}$
1300 - 1500	$5\cdot 10^{-17} - 1\cdot 10^{-15}$
1500 - 1800	$1\cdot 10^{-17} - 1\cdot 10^{-14}$
1000 - 1750	$2 \cdot 10^{-16} - 2 \cdot 10^{-13}$

Высокий разброс значений коэффициента диффузии отмечают и авторы работы [9]. Так, в оксидном топливе при температуре 600 К, значение *D* варьируется от 1·10⁻¹⁰ до 1·10⁻¹⁶ см²/с. По мнению авторов работы [9] разброс значений коэффициента диффузии связан прежде всего, с разной степенью окисления топлива.

Действительно, при температуре 850 °С значение коэффициента диффузии ГПД составляет 2.6·10⁻¹⁷ см²/с [10], а при температуре $\approx 600 \text{ K} - 5.3 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2/\text{с}$ [11]. В гиперстехиометрическом топливе UO_{2+z}, что характерно для негерметичных твэлов, значение коэффициента диффузии ксенона возрастает до 10⁻¹⁰ см²/с [12].

В работе [13, 14] изучена зависимость коэффициента диффузии ГПД от температуры и степени окисления топлива UO_{2+z}. Результаты приведены в табл. 2.

Отметим, что металлографические исследования облучённых топливных образцов (оксидное топливо) показали, что геометрическая площадь поверхности топливных образцов составляет менее 25 % от общей площади открытой поверхности (т.е. с учётом площади открытых пор) [15]. Эти результаты подтверждаются данными работы [16], согласно которым общая площадь открытой поверхности топливной композиции в области дефекта существенно больше и может в 4–100 раз превосходить соответствующую дефекту геометрическую площадь образца.

Таблица 2

Температура топлива, К		D , e	cm ² /c
в центре	на поверхности	$Z \le 0.0001$	Z = 0.1
923	604	1.2.10-17	_
1155	629	2.2.10-17	_
1410	643	8.1.10-17	-
1165	791	1.9.10-17	1.2.10-16
1485	843	1.6.10-16	2.6.10-14
1867	894	8.4.10-15	1.7.10-12

Изменение коэффициента диффузии (D) в зависимости от степени окисления UO₂₊₇ [13]

В табл. 3 приведена зависимость коэффициента диффузии ГПД от степени окисления топлива при температуре 1400 К [14].

Таблица 3

Изменение коэффициента диффузии (D) в зависимости от степени окисления UO₂₊₇ [14]

Z	<i>D</i> , см²/с
$-0.066 \div -0.003$	$3.7 \cdot 10^{-16} \div 1.5 \cdot 10^{-15}$
$-0.005 \div 0.005$	$8.7 \cdot 10^{-14} \div 8.7 \cdot 10^{-12}$
0.021 ÷ 0.040	$8.0 \cdot 10^{-14} \div 8.0 \cdot 10^{-10}$

Высокий разброс значений коэффициента диффузии ГПД наблюдается и для твэлов с топливом дисперсионного типа (топливо распределено в матрице из неделящегося материала). По данным работы [9] коэффициент диффузии для топлива с алюминиевой матрицей при 200 °C составляет 2.8·10⁻¹³ см²/с. При этом в работе [17] отмечается, что за месяц наблюдений при температурах от 300 °C до 550 °C выхода ГПД из топлива с алюминиевой матрицей обнаружено не было (открытая поверхность топлива составляла 0.5–0.6 см²). По данным работы [18] значения коэффициента диффузии криптона в алюминиевой фольге даже при температурах 440–540 °C значительно ниже, чем в работе [9] (результаты исследований представлены в табл. 4). Наблюдаемые расхождения могут быть объяснены дополнительным выходом криптона из топливной матрицы, подверженной действию осколков деления, однако

размеры повреждённой области сильно зависят от состояния топливной матрицы.

Таблица 4

Температура, К	<i>D</i> , см ² /с	Температура, К	<i>D</i> , см²/с
713	0.3.10-14	781	2.5.10-14
748	$0.7 \cdot 10^{-14}$	793	2.8.10-14
772	2.0.10-14	813	3.9.10-14
713 748 772	$ \begin{array}{r} 0.3 \cdot 10^{-14} \\ 0.7 \cdot 10^{-14} \\ 2.0 \cdot 10^{-14} \end{array} $	781 793 813	$ \begin{array}{r} 2.5 \cdot 10^{-14} \\ 2.8 \cdot 10^{-14} \\ 3.9 \cdot 10^{-14} \end{array} $

Значения коэффициента диффузии криптона в алюминиевой фольге [18]

Из приведённых выше данных следует, что значение коэффициента диффузии ГПД в облучённом топливе может существенно меняться в зависимости от условий экспериментов. К факторам, влияющим на значение коэффициента диффузии ГПД в негерметичных ОТВС, следует отнести температуру нагрева, степень выгорания и окисления, фактическое состояние топливной матрицы и площади открытой поверхности топлива.

Таким образом, для каждого конкретного случая определение значения коэффициента диффузии требует отдельных дорогостоящих экспериментальных исследований. По этой причине потребовалась разработка математической модели диффузионного выхода ГПД из негерметичных твэлов, параметры которой могут быть оперативно определены непосредственно в процессе дефектации ОТВС.

2. Разработка математической модели выхода ГПД из негерметичных твэлов

Математические модели выхода ГПД из негерметичных твэлов определяются физическими методами дефектации ОТВС. Наличие диффузионного сцепления оболочки с топливной матрицей [19] препятствует изменению размеров дефекта при нагреве твэлов в процессе внереакторной дефектации. Также исключается и скопление радионуклидов внутри открытых полостей под оболочкой твэла в области дефекта [20]. По этой причине скорость выхода ГПД из негерметичных твэлов дисперсионного типа в процессе внереакторной дефектации ОТВС «сухим» методом определяется, прежде всего, особенностями миграции атомов криптона в топливе.

2.1 Миграция продуктов деления в облучённом топливе

Для математического описания процессов миграции выбранного нуклида в топливе в работах [6, 11, 21] используется приближение, согласно которому все атомы ГПД участвуют в диффузионном процессе. В этом случае изменение количества ядер диффундирующего в среде нуклида с течением времени описывается дифференциальным уравнением диффузии:

$$\frac{\partial C(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \nabla \left(D(\mathbf{r},T) \nabla C(\mathbf{r},t) \right) - \lambda C(\mathbf{r},t) , \qquad (1)$$

где

 $C(\mathbf{r}, t)$ – концентрация нуклида от времени в единице объёма, ядер/см³;

 $D(\mathbf{r}, T)$ – коэффициент диффузии нуклида в топливе, см²/с;

 $\lambda-$ постоянная распада нуклида, с⁻¹.

Как отмечается в [22], решения уравнения диффузии (1) при нестационарных состояниях системы (т.е. при изменении температуры топлива T и коэффициента диффузии D(T))

имеют громоздкий вид. По этой причине большинство экспериментов, проводимых для описания миграции выбранного нуклида в топливе, проводятся при условиях, максимально приближенных к стационарным. В этом случае количество ГПД, диффундирующих из топлива в контролируемую среду, можно оценить с использованием решений уравнения (1), полагая $D(\mathbf{r}, T) = const$. Например, для описания выхода долгоживущих и стабильных нуклидов из сферического топливного образца радиусом *a* (после его облучения), авторы работ [23–30], с погрешностью не более 0.1 %, используют следующие выражения для приближенного значения N'(t) количества ядер нуклида, вышедших из сферического топливного образца с радиусом *a* за время *t* после окончания облучения, ядер:

$$N'(t) = N_0 \cdot \left(6\sqrt{\frac{D \cdot t}{\pi a^2}} - 3\frac{Dt}{a^2} \right);$$
для $D \cdot t \le 0.1 \cdot a^2,$ (2)

$$N'(t) = N_0 \cdot \left(1 - \frac{6}{\pi^2} e^{-\pi D \cdot t/a^2}\right);$$
для $D \cdot t > 0.1 \cdot a^2.$ (3)

где

 $N_0 - \kappa$ оличество ядер нуклида в сферическом топливном образце на момент окончания облучения, ядер;

t – время, прошедшее после окончания облучения, с;

а – радиус сферического топливного образца, из которого происходит диффузия нуклида, см.

Для описания выхода ГПД из негерметичных дисперсионных твэлов, в условиях малого выхода нуклидов из неделящейся матрицы, может быть использовано приближение, предложенное в работах [14, 28] для поликристаллического топливного образца, которое получается из выражения (2) при $D \cdot t \le 0.1 \cdot a^2$ и замене *a* на 3V/S:

$$N = 2N_0 \frac{S}{V} \sqrt{\frac{Dt}{\pi}}, \, \text{ядер}$$
(4)

S – площадь открытой поверхности топлива, включая открытые поры, см²;

V-объём топлива, см³.

Для учёта процессов, протекающих в облучённом топливе, вместо реального коэффициента диффузии (D) авторы работ [11, 28–32] используют «кажущийся» коэффициент диффузии D^* , учитывающий совокупность процессов, влияющих на миграцию ГПД в топливе, включая микроструктуру топлива. В этом случае из выражения (4) вытекает формула для описания изменения активности радионуклида (A(t), Бк), выходящего из облучённого топлива за время наблюдений [33]:

$$A = 2a_V S \sqrt{\frac{D^*}{\pi}} \cdot \sqrt{t} , \ \mathbf{b}\mathbf{\kappa} \tag{5}$$

где

где

 a_{ν} – объемная активность радионуклида в топливе на момент окончания облучения, Бк/см³.

Использование выражения (5) для определения активности радионуклида, выходящего из облучённого топлива, возможно только в случае, когда условия эксперимента близки к изотермическим [11]. Температура ОТВС в ходе дефектации в нашем случае изменяется: монотонно возрастает при нагреве сборки до достижения заданного значения температурной уставки нагревателей.

В подобных условиях решение уравнения (1) может быть получено только после достижения постоянной температуры ОТВС. Так, для случая односторонней десорбции радионуклидов из полубесконечного твёрдого тела в полубесконечное пространство в работах [21, 34] предложено решение уравнения (1), учитывающее произвольное начальное распределение концентрации долгоживущего или стабильного нуклида по глубине топлива:

$$C(x,t) = \frac{1}{2\sqrt{\pi \cdot Dt}} \int_{0}^{\infty} C(y,0) \left[e^{-\frac{(y-x)^{2}}{4 \cdot Dt}} - e^{-\frac{(y+x)^{2}}{4 \cdot Dt}} \right] dy$$
(6)

где

C(y, 0) ядер/см³ – начальное распределение концентрации долгоживущего или стабильного нуклида по глубине топливных частиц (контактирующих с дефектом) при стационарных условиях: D = const, t = 0;

x – расстояние до открытой поверхности топлива, см.

В качестве примера, ниже на рисунке приведена зависимость концентрации диффундирующего нуклида от расстояния до открытой поверхности топлива (x), для моментов времени $t_1 < t_2 < t_3$ и начальной концентрации $C(x, 0) = C_0$ [21, 34]. Из рисунка видно, что вблизи открытой поверхности топлива (экстраполированной границы твёрдого тела) концентрация нуклида ниже, чем в глубине топлива (т.е. при больших x). Также следует отметить, что с ростом времени (параметр *t*) концентрация нуклида в топливе снижается.



Рисунок. Изменение концентрации диффундирующего нуклида по глубине топлива с течением времени (t₁ < t₂ < t₃)

Таким образом, при расчётном моделировании установлено, что в процессе дефектации ОТВС должен наблюдаться эффект «обеднения» поверхностных слоёв топлива (снижение с течением времени концентрации ГПД в слоях топлива, близких к его открытой поверхности).

2.2 Приведение модели выхода ГПД к условно стационарным условиям

Как уже отмечалось, с момента окончания облучения ОТВС, а также в процессе нагрева сборки при дефектации температура топлива непостоянна. Для упрощения математического описания процессов предлагается разделить дефектацию на два этапа:

- первый этап («нестационарный») начинается с момента окончания облучения ОТВС и включает: время выдержки сборки после облучения до начала дефектации и время её нагрева до заданной температуры;
- второй этап («стационарный») начинается с момента достижения стационарной температуры нагрева ОТВС и заканчивается с завершением дефектации.

При таком разделении на этапы, для описания миграции долгоживущих ГПД по глубине топлива при достижении стационарных условий (второй этап дефектации) может быть использовано выражение (6). Для его практического применения был осуществлён переход от реальных параметров эксперимента (время и температура) к так называемому эффективному времени.

Для осуществления данного перехода полагается, что коэффициент D зависит не от координат, а только от температуры (которая зависит от времени). Это позволяет ввести в уравнение (1) эффективное время ξ , такое, что:

$$\partial \xi = \frac{D(T(t))}{D(T_{i \to \phi \phi})} \partial t \quad \cdot$$

В этом случае, после деления уравнения (1) на $\frac{D(T(t))}{D(T_{3\phi\phi})}$ и замены переменных (*t* на ξ), мы получаем уравнение диффузии с постоянным коэффициентом диффузии при некоторой выбранной температуре (дефектации):

$$\frac{\partial C(\mathbf{r},\xi)}{\partial \xi} = D(T_{s\phi\phi}) \cdot \nabla^2 C(\mathbf{r},\xi) - \lambda C(\mathbf{r},\xi) \cdot \frac{D(T_{s\phi\phi})}{D(T(t))}$$
(7)

Если вторым слагаемым (распадом ядер) в правой части уравнения (7) за время дефектации можно пренебречь, что справедливо для долгоживущих нуклидов и, в частности, для нуклида ⁸⁵Kr, концентрация ГПД зависит от эффективного времени. Значение ξ можно при этом вычислить по формуле:

$$\xi = \int_{0}^{t} \frac{D(T(t'))}{D(T_{s\phi\phi})} dt' \approx \sum_{i} \frac{D(T_{i}) \cdot \Delta t_{i}}{D(T_{s\phi\phi})} = \sum_{i} \xi_{i} \quad .$$

$$\tag{8}$$

Таким образом, появляется возможность замены реальной зависимости изменения температуры ОТВС на первом этапе дефектации кусочно-постоянной функцией [35]: каждому участку с температурой T_i и длительностью t_i приписывается одна выбранная температура $T_{_{3\phi\phi}}$, равная температуре второго этапа. Чтобы распределение концентрации ГПД по глубине топлива при $T_{_{3\phi\phi}}$ было таким же, как и при реальной температуре (T_i), длительность каждого *i*-го участка (t_i) заменяется эффективным временем (ξ_i).

Использование эффективного времени позволяет представить миграцию ГПД в топливе после окончания облучения при меняющихся температуре T(t) и коэффициенте диффузии D(t) в виде процесса, протекающего при выбранной температуре $T_{_{эф\phi}}$ за соответствующее эффективное время (при постоянном коэффициенте диффузии D). В связи с этим, для описания диффузии атомов ГПД в топливе при указанных условиях можно использовать выражение (5) после выполнения следующих преобразований:

- реальное время *t* заменить суммой ξ + τ, где ξ – эффективное время первого этапа

дефектации (время, прошедшее с момента окончания облучения ОТВС до начала второго этапа дефектации), с; τ – время второго участка дефектации, с;

- учесть распад ядер во время первого этапа дефектации (включая «хранение» OTBC), который не учитывается в уравнении диффузии (7), за счёт введения множителя $e^{-\lambda t}$, численно равного вероятности того, что ядра ⁸⁵Kr не распадутся до начала второго этапа дефектации (с момента окончания облучения);
- пренебречь распадом долгоживущих ГПД за время дефектации одной ОТВС.

В результате преобразований были получены выражения, позволяющие рассчитать выход ГПД из ОТВС за время первого этапа дефектации (A_1) , а также за время первого и второго этапов (A_{1+2}) :

$$A_{I} = 2a_{V}S\sqrt{\frac{D(T_{s\phi\phi})}{\pi}} \cdot e^{-\lambda t}\sqrt{\xi} \quad , \text{ 5}\kappa$$
(9)

$$A_{l+2} = 2a_V S \sqrt{\frac{D(T_{s\phi\phi})}{\pi}} \cdot e^{-\lambda t} \sqrt{\xi + \tau} , \ \mathbf{b}\kappa$$
(10)

где

- *t* время выдержки ОТВС после облучения до начала дефектации, с;
- τ время дефектации при $T_{_{}_{}_{}_{\phi\phi}}$, с;
- λ постоянная распада реперного нуклида, с⁻¹.

Разница между A_{1+2} и A_1 позволяет определить активности ГПД, поступивших в контур стенда за время проведения второго этапа дефектации к моменту времени τ . В результате указанных преобразований получена математическая модель выхода ГПД из негерметичных ОТВС дисперсионного типа при постоянной температуре ОТВС (ОТВС нагрета до заданной температуры, которая поддерживается на постоянном уровне):

$$A_2 = G \cdot \left(\sqrt{\xi + \tau} - \sqrt{\xi}\right), \, \mathsf{bk} \tag{11}$$

где

 $G = 2a_V S \sqrt{\frac{D(T_{3\phi\phi})}{\pi}} e^{-\lambda t}$ (Бк/с^{1/2}) – эффективный коэффициент пропорциональности;

A₂ – активности ГПД, поступающих из негерметичной ОТВС за время проведения второго этапа дефектации к моменту времени τ, с.

В модели (11) такие параметры, как объёмная активность криптона в топливе a_{ν} , площадь открытой поверхности топлива *S*, значение эффективного коэффициента диффузии $D(T_{s\phi\phi})$ объединены в один эффективный коэффициент пропорциональности *G*. При стационарных условиях все параметры, входящие в указанный коэффициент, кроме открытой поверхности топлива *S*, для ОТВС одной а.з. являются постоянными.

Таким образом, коэффициент пропорциональности *G* может быть использован для косвенной оценки размеров дефекта ОТВС. Значение данного коэффициента можно получить напрямую в ходе дефектации при определении параметров модели (11). Расчёт параметров модели выполняется по алгоритму, представленному в следующем разделе.

3. Алгоритм расчёта параметров модели по результатам дефектации

Определение коэффициента пропорциональности G может быть выполнено с применением

результатов дефектации в следующем порядке:

- определение скорости выхода ГПД из топлива v, для момента времени t;
- определение эффективного времени ξ;
- расчёт коэффициента пропорциональности G.

3.1 Определение скорости выхода ГПД из топлива

Расчёт *v*, производится по формуле:

$$\upsilon_i = \frac{a_{i+I} - a_i}{t_{i+I} - t_i} \cdot V , \, \mathsf{F}_{\mathsf{K}}/\mathsf{c}$$
(12)

где

 a_i и a_{i+1} – объёмные активности ГПД в контуре стенда дефектации, измеренные в моменты времени t_i и t_{i+1} , соответственно, Бк/м³;

 t_i и t_i – время выполнения *i*-го и *i*+1-го измерения объёмной активности ГПД в контуре стенда дефектации, ч;

V – объём газа в контуре стенда дефектации, м³.

3.2 Определение эффективного времени ξ

Определения параметра ξ может быть выполнено двумя способами. В первом случае необходимо знать изменение температуры топливной композиции с момента окончания облучения и до начала экспериментов, иметь априорные данные по коэффициентам диффузии нуклида в топливе и энергии активации диффузии ГПД в топливе. В этом случае расчёт ξ может быть выполнен по следующей формуле, вытекающей из (8):

$$\xi = \frac{1}{D(T_{s\phi\phi})} \cdot \sum_{i=1}^{n} D_i \cdot \Delta t_i , c$$
(13)

где

 $D(T_{_{3\phi\phi}})$ – коэффициент диффузии нуклида в топливе при эффективной температуре $T_{_{3\phi\phi}}$, см²/с;

 D_i – «эффективные» коэффициенты диффузии нуклида в материале топливной композиции на *i*-ом участке гистограммы, см²/с;

 Δt_i – длительность по времени *i*-го временного интервала, *c*;

n – число временных интервалов на участке гистограммы, начиная с момента окончания облучения.

Во втором случае, при отсутствии априорных данных об изменении значений коэффициентов диффузии с момента окончания облучения, параметр 5 может быть определен по экспериментальных данным на основе соотношения, полученного из модели (11) и выражения (12):

$$\frac{\upsilon_1}{\upsilon_2} = \frac{\sqrt{\xi + \tau_4} + \sqrt{\xi + \tau_3}}{\sqrt{\xi + \tau_2} + \sqrt{\xi + \tau_1}},$$
(14)

где

 τ_1, τ_2 – время первых двух замеров активности (при стационарной температуре), с;

 $\tau_{\scriptscriptstyle 3}, \tau_{\scriptscriptstyle 4}$ – время последних двух замеров активности, с;

 $v_{_{l}}$ и $v_{_{2}}$ – скорости выхода ГПД из топлива, которые рассчитываются по первым двум

 (τ_1, τ_2) и последним двум (τ_3, τ_4) замерам объёмной активности ГПД в контуре стенда дефектации соответственно, Бк/с.

При малых объёмах массивов экспериментальных данных допускается использовать для анализа в качестве третьей контрольной точки данные по второй, а в качестве четвёртой – данные по третьей.

3.3 Определение коэффициента пропорциональности G

При известном значении эффективного времени ξ значение коэффициента пропорциональности *G* может быть определено с использованием выражения, полученного из соотношения (11):

$$G = \upsilon(\tau_1, \tau_2) \cdot \left(\sqrt{\xi + \tau_1} + \sqrt{\xi + \tau_2}\right), \quad \text{EK/c}^{1/2}$$
(15)

Сопоставление результатов дефектации, полученных при различных условиях (разное время нагрева, разные начальные условия, разная скорость возрастания температуры), но при одинаковой $T_{_{3\phi\phi}}$, предлагается выполнять путём сравнения коэффициентов *G*, соответствующих этим условиям.

Отметим, что модель (11) применима для анализа экспериментальных данных только при достижении стационарной температуры в топливе. Для выбора из полученных экспериментальных данных участков, которые относятся ко второму этапу эксперимента, предлагается специальный критерий отбраковки экспериментальных данных.

4. Разработка критерия отбраковки экспериментальных данных, не соответствующих стационарным условиям

В основу критерия отбраковки результатов лёг обсуждаемый выше эффект «обеднения» поверхностных слоёв топлива с течением времени (см. рисунок). Учитывая, что температура ОТВС в процессе дефектации монотонно повышается, а при достижения заданной уставки поддерживается на постоянном уровне, критерий фиксирует момент значимого снижения скорости выхода ГПД (v) (т.е. на фоне погрешности измерений). Это позволяет исключить из рассмотрения результаты, полученные в процессе нагрева, когда велико влияние переходных процессов в топливе.

Из соотношения (15) следует, что при постоянной температуре топлива скорость выхода ГПД начинает снижаться со временем:

$$\upsilon(\tau_1, \tau_2) = \frac{G}{\sqrt{\xi + \tau_1} + \sqrt{\xi + \tau_2}}.$$
(16)

Моментом достоверной идентификации начала второго этапа дефектации (стационарного этапа) является момент обнаружения значимого уменьшения (на фоне погрешности измерения) значений скорости выхода ГПД, полученных на основе соотношения (16). В качестве нулевой гипотезы принимается гипотеза, что истинные значения скоростей выхода нуклидов одинаковы. Имеющийся разброс между наблюдаемыми величинами скорости выхода ГПД при данной гипотезе обусловлен наличием погрешности измерений.

Для проверки нулевой гипотезы используем случайную величину (Z), которая рассчитывается по формуле [36]:

$$Z = \frac{\upsilon_i - \upsilon_{i+l}}{\sigma(\upsilon_i - \upsilon_{i+l})^2},\tag{17}$$

где

 $\sigma(v_{i} - v_{i+l})$ – среднее квадратическое отклонение для значения $v_{i} - v_{i+l}$.

В качестве конкурирующей гипотезы рассматривается версия, что истинные значения скоростей выхода нуклидов значимо различаются на фоне погрешности их определения. При справедливости конкурирующей гипотезы должно выполняться условие:

$$|Z| > Z_{\kappa p} , \qquad (18)$$

где $Z_{\kappa p}$ – граничное значение величины Z, при превышении которого нулевая гипотеза отвергается.

Расчёт граничного значения $Z_{\kappa p}$ выполняется с использованием функции Лапласа $\Phi(Z_{\kappa p})$ [36], которая зависит от уровня значимости критерия α :

$$\Phi(Z_{\kappa p}) = \frac{1-\alpha}{2}, \qquad (19)$$

Таким образом, при значимом отличии величины v_i от v_{i+1} (т.е. на фоне погрешности измерений), учитывая (17) и (18), должно выполняться условие:

$$\left|\frac{\upsilon_{i} - \upsilon_{i+l}}{\sqrt{\left(\varDelta \upsilon_{i}\right)^{2} + \left(\varDelta \upsilon_{i+l}\right)^{2}}}\right| > Z_{\kappa p} , \qquad (20)$$

где

 Δv_i и Δv_{i+1} – погрешности определения скоростей v_i и v_{i+1} , соответственно, Бк/с.

Отметим, что значение функции Лапласа (19) при доверительной вероятности 0.95 (уровень значимости $\alpha = 0.05$) равно 0.475. Согласно [36] функция Лапласа принимает данное значение при $Z_{_{KP}} = 1.96$.

Следует учесть, что температура ОТВС возрастает монотонно. После достижения постоянного значения (150, 200 или 300 °С), температура ОТВС не снижается до окончания эксперимента. В подобных условиях, приведённое неравенство (20) можно переписать в следующем виде:

$$\psi = \frac{\upsilon_{\max} - \upsilon_k}{\sqrt{(\Delta \upsilon_k)^2 + (\Delta \upsilon_{\max})^2}} > 1.96,$$
(21)

где

T

 υ_{max} – максимальная скорость выхода ГПД из топлива на рассматриваемом участке, Бк/с;

- v_k скорость выхода ГПД из топлива после достижения максимальной скорости (в момент времени t_k), Бк/с;
- Δv_k и Δv_{max} погрешности определения скоростей v_k и v_{max} соответственно, Бк/с.

Для удовлетворения критерию (21), скорость выхода ГПД из топлива о должна уменьшится на величину, превышающую суммарную погрешность её определения в 1.96 раз. При невыполнении данного условия топливо нельзя считать нагретым до постоянной температуры.

Заключение

1. Анализ закономерностей, описывающих выход ГПД из облучённого топлива, позволил распространить результаты, полученные для постоянных температур, на случаи с непостоянной температурой. Для этого был использован переход от реальных времени и температуры дефектации к «эффективным» параметрам (эффективному времени дефектации и коэффициенту пропорциональности).

- 2. Разработаны математические зависимости, связывающие суммарную площадь дефекта оболочки твэлов ЯЭУ транспортного назначения со скоростью накопления ГПД в контуре стенда дефектации. Площадь открытой поверхности топлива, объёмная активность ГПД в твэлах и коэффициент диффузии в данных соотношениях объединены в один эффективный коэффициент пропорциональности G. Отношение коэффициентов G для ОТВС одной а.з. позволяет оценить относительную разгерметизацию данных сборок даже при их многократных нагревах.
- 3. Теоретически обоснованы алгоритмы расчёта значений коэффициентов пропорциональности G, которые могут быть определены по результатам дефектации. При этом, в качестве контролируемого параметра следует использовать скорость накопления ГПД в контуре. Переход от коэффициента диффузии D к коэффициенту G позволяет отказаться от проведения дополнительных дорогостоящих экспериментов по определению коэффициента диффузии.
- 4. Анализ разработанных зависимостей, описывающих выход ГПД из облучённого топлива показал, что в процессе дефектации при постоянной температуре скорость накопления ГПД должна с течением времени снижаться. Показано, что данный эффект связан с «обеднением» поверхностных слоёв топлива. На основании этого разработан и предложен критерий, который позволяет отбраковать экспериментальные данные, соответствующие нестационарным по температуре процессам.

Conclusions

- 1. Analysis of relationships describing the release of gaseous fission products from irradiated fuel has allowed for extrapolation of results obtained for constant temperatures to non-constant temperature cases. Toward this end, the authors have used transition from real leak test time and temperature to "effective" parameters (leak test effective time and proportionality factor).
- 2. Relationships are developed that correlate the total leak size area in fuel cladding of propulsion nuclear reactors with the rate of gaseous fission product accumulation in the circuit of the leak test setup. The open fuel surface area, volumetric activity of gaseous fission products in fuel elements, and diffusion coefficient in the relationships are combined into one effective proportionality factor, *G*. The relation of *G* factors for spent fuel assemblies in one reactor core can be used to estimate relative damage of the assemblies even if they are heated many times.
- 3. Algorithms are theoretically validated for calculation of G proportionality factor values that can be determined from leak test results. The rate of gaseous fission product accumulation in the circuit should be used as the test parameter. The use of G factor instead of diffusion coefficient, D, makes it possible not to conduct additional expensive experiments for determining the diffusion coefficient.
- 4. Analysis of the developed relationships describing the release of gaseous fission products from irradiated fuel has shown that, at constant temperature, the rate of gaseous fission product accumulation should decrease with time. It is shown that this effect is related to "depletion" of the fuel surface layers. Based on this observation, a criterion is developed and suggested for rejecting experimental data obtained under unsteady-state temperature conditions.

Литература

1. *Перепелкин С.О.* Изучение состояния и возможности извлечения негерметичных твэлов из ремонтопригодных ТВС ВВЭР-1000: автореферат дис. ... канд. техн. наук. – Димитровград, 2010. – 24 стр.

- Правила ядерной безопасности реакторных установок атомных станций (НП-082-07).
 Федеральная служба по экологическому, технологическому и атомному надзору (Постановление от 10 декабря 2007 года № 4). – 23 с.
- Сорокин А.А. Создание расчетных средств для моделирования поведения негерметичных твэлов и активности радионуклидов в теплоносителе первого контура легководных реакторов: автореферат дис. ... канд. физ. мат. наук. – ФГУП «Государственный научный центр Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований», 2010. – 27 с.
- 4. *Орлёнков И.С., Краснопёров В.М., Фоменков Р.В.* Анализ и обобщение опыта КГО. Разработка рекомендаций: отчёт о НИР. инв. №1047/о. – НИТИ, 2007. – 56 стр.
- 5. *Rest J.* Modeling the behavior of Xe, I, Cs, Te, Ba and Sr in the solid and liquefied fuel during severe accidents // J. Nucl. Mater. 1987. Vol. 150. P. 203–225.
- 6. Ластман Б. Радиационные явления в двуокиси урана. М.: Атомиздат, 1964. 288 с.
- *Turnbull J.A.* The diffusion coefficient of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide / J.A. Turnbull, C.A. Friskney // J. Nucl. Mater. – 1982. – Vol.107. – P. 168–184.
- 8. *Toshiaki Kogai*. Modelling of fission gas release and gaseous swelling of light water reactor fuels // J. Nucl. Mater. 1997. Vol. 244. P. 131–140.
- 9. *Vinson D.W.* Containment evaluation of breached AL-SNF for cask transport / D.W. Vinson, R.L. Sindler, N.C. lyer . Wsrc-MS-2005-00654.
- 10. Fission gas release in FBR MOX fuel irradiated to high burnup / K. Maeda [et al.] // Journal of Nuclear Materials. 2005. 346. P. 244-252.
- Дегальцев Ю.Г. Поведение высокотемпературного ядерного топлива при облучении / Ю.Г. Дегальцев, Н.Н. Понаморёв-Степной, В.Ф. Кузнецов. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 208 с.
- 12. *Иванов Н.А.* Оценка степени негерметичности твэлов с модернизированным топливом на работающем и остановленном реакторе ВВЭР: дис. ... канд. техн. наук. Подольск, 2017. 156 с.
- 13. *Lewis B.J.* Fundamental aspects of defective nuclear fuel behavior and fission product release // J. Nucl. Mater. 1988. Vol. 160. P. 201–217.
- 14. Lawrence G.T. A review of the diffusion coefficient of fission-product rare gases in uranium dioxide // J. Nucl. Mater. 1978. Vol. 71. P. 195-218.
- 15. *Anne M.C.* Harnden-Gillis. Fission product release from SLOWPOKE-2 reactors. Queen's University, Department of Physics, Ph.D. Thesis, 1993.
- 16. *Емельянов И.Я*. Конструирование ядерных реакторов / И.Я. Емельянов, В.И. Михан, В.И. Солонин. М.: Энергоатомиздат, 1982. 400 с.
- Release of fission products from irradiated aluminide fuel at high temperatures / T. Shibata, T. Tamai, M.Hayashi, J.C. Posey, J.L. Snelgrove // Nuclear Science and Engineering. – 87 (1984). – P. 405–417.
- Thermal extraction of krypton in aluminum using mass spectrometer / K. Takaishi [et al.]
 // Phys. stst. sol. (a) 95. 135 (1986). P. 135-139.
- 19. *Деев В.И.* Основы расчёта судовых ЯЭУ / В.И. Деев, Н.В. Щукин, А.Л. Черезов; под ред. В.И. Деева. М.: НИЯУ МИФИ, 2012. 256 с.
- 20. Дисперсионные твэлы: в 2-х томах, Т.2: Конструкция и работоспособность / А.Г. Самойлов, А.И. Каштанов, В.С. Волков. М.: Энергоатомиздат, 1982. 256 с.

- 21. J. Crank. The mathematics of diffusion: Second edition. Clarendon press Oxford, 1975. 421 p.
- Диффузия трития, генерируемого в метатитанате лития Li2TiO3 в процессе облучения тепловыми нейтронами в реакторе BBP-К / И.Н. Бекман, И.М. Бунцева, И.Л. Тажибаева [и др.] // ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез. – 2009. – Вып. 2. – С. 83–92.
- Lassmann K. Numerical algorithms for intragranular fission gas release / K. Lassmann, H. Benk // J. Nucl. Mater. – 2000. – Vol. 280. – P. 127–135.
- 24. *K. Forderg A.R.* Massihl Difusion theory of fission gas migration in irradiated nuclear fuel UO₂ // Journal of Nuclear Materials. 135 (1985). P. 140–148.
- 25. *Castleman A.W.* Diffusion of iodine through aluminum / A.W. Castleman, F.E. Hoffmann, A.M. Eshaya // BNL 644 (T-205), September 1960.
- 26. Diffusion phenomena and isotope effects in the extraction of fission-product xenon and krypton from irradiated U3O8 / J. Can [et al.] // Canadian Journal of Physics. -1960. -Vol. 38. - P. 945-954.
- Lewis B.J. A kinetic model for fission-product release and fuel oxidation behavior Zircoloy-clad fuel elements under reactor accident conditions / B.J. Lewis, D.S. Cox, F.C. Iglesias // J. Nucl. Mater. -1993. - Vol. 207. - P. 228-241.
- 28. Van Uffelen Paul. Modelling of Nuclear Fuel Behaviour. EUR 22321 EN DG Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements. 2006.
- Fission Products Release from Irradiated FBR MOX Fuel during Transient Conditions. / I. Sato [et al.] /Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY. -2003. - Vol. 40, No. 2. - P. 104-113.
- 30. Release of fission products (Xe, I, Te, Cs, Mo and Tc) from polycrystaline U02 / S.G. Prussin [et al.] // Journal of Nuclear Materials . 154 (1988). P. 25-37
- 31. *Denis A*. Simulation of fission gas release during temperature transients. Studies on fuels with low fission gas release. IAEA, Moscow, Russia, October 1996. PP.43–51.
- Denis A. Simulation of isothermal fission gas release / A. Denis, R. Piotrkowski // J. Nucl. Mater. – 1996. – Vol. – 229. – P. 149–154.
- 33. Краснопёров В.М. Основные закономерности развития негерметичности интерметаллических твэлов на остановленном реакторе / В.М. Краснопёров, Р.В. Фоменков, И.С. Орлёнков // Технологии и системы обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок: материалы IV н-техн. совещания «Атомэнергоаналити-ка-2007»; вып. 6. СПб.: Изд.-во «Менделеев», 2007. С. 214–218.
- 34. *Бекман И.Н.* Математика диффузии: учебное пособие. М.: Издательство «ОнтоПринт», 2016. 400 с.
- 35. Фоменков Р.В. Разработка методики дефектации ОТВС ЯЭУ транспортного назначения с нагревом до различных температур / Р.В. Фоменков, Р.Э. Зинатуллин // Реакторные материалы атомной энергетики: тезисы докладов межотраслевой н-техн. конф. – Екатеринбург, 2021. – С. 39–40.
- 36. Гмурман В.Е. Теория вероятности и математическая статистика. М.: «Высш. школа», 1972. 368 с.

УДК 621.039.534

DOI:10.52069/2414-5726 2023 1 31 31

Особенности применения ионохроматографического и комплексонометрического методов для определения общей жесткости в теплоносителях с высоким содержанием продуктов коррозии

Е.С. Виноградова¹, Т.В. Воронина¹, С.Н. Кузнецова¹, Ю.В. Цапко^{2, 3}

¹НИЦ «Курчатовский институт» – ПИЯФ, г. Гатчина Ленинградской области, Россия
 ²ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия
 ³Институт Ядерной Энергетики, филиал Санкт-Петербургского политехнического университета им. Петра Великого, г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия

Аннотация

Контур жидкостного регулирования (ЖР) относится к системе, важной для безопасной эксплуатации реактора ПИК, поэтому химический контроль качества его теплоносителя является актуальным как на стадии заполнения, так и в процессе эксплуатации. После заполнения системы возникли трудности с определением общей жесткости в теплоносителе. Наиболее вероятной причиной этого могло быть присутствие в теплоносителе ЖР примесей – продуктов коррозии конструкционных материалов. Исследован мешающий эффект влияния на результаты определения общей жесткости титриметрическим и ионохроматографическим методами на модельных растворах с добавлением и без добавления ионов коррозионного происхождения (Fe, Ni и Mn). Установлено, что ионы Ni и Mn оказывают заметное мешающее влияние при титровании проб при их концентрации более 50 мкг/дм³. Мешающего влияния ионов Fe (III) в экспериментах не установлено. Показано, что результаты ионохроматографического определения общей жесткости сопряжены с существенной погрешностью измерений (±40 %) независимо от наличия продуктов коррозионного происхождения в растворе.

Ключевые слова: химический контроль, тяжеловодный теплоноситель, общая жесткость, комплексонометрическое титрование, ионная хроматография, мешающие ионы.

Using of ion chromatographic and complexometric methods for determining the total hardness in coolants with a high content of corrosion products

E.S. Vinogradova¹, T.V. Voronina¹, S.N. Kuznetsova¹, Y.V. Tsapko^{2,3}

 ¹NRC «Kurchatov Institute» – PNPI, Gatchina, Leningrad region, Russia
 ²Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia
 ³Institute of Nuclear Power Engineering (branch) of Peter the Great Saint Petersburg Polytechnic University, Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia

Abstract

The liquid regulation circuit (LR) is an important to safety system of the PIK reactor, therefore the coolant chemistry in LR should be constantly monitored. A difficulty was faced in determination of the coolant total hardness. This was probably due to the presence of impurities, such as corrosion products from structural materials, in the LR coolant. The influence of these interfering impurities on results of the total hardness measurement by titrimetric and ion chromatographic methods was studied using model solutions with and

without addition of corrosive ions (Fe, Ni, and Mn). It was found that Ni and Mn ions with concentration of above 50 μ g/dm³ had an appreciable interfering effect in the titration of samples. No interfering effect of Fe (III) ions was observed in the experiments. Ion chromatographic measurements of the total hardness had a large error (±40 %) with or without presence of corrosion products in the solution.

Key words: chemical monitoring, heavy water coolant, total hardness, complexometric titration, ion chromatography, interfering ions.

Химико-технологический режим системы жидкостного регулирования реактора ПИК

В настоящее время в НИЦ «Курчатовский институт» – ПИЯФ вводится в эксплуатацию высокопоточный исследовательский реактор ПИК. В состав реакторной установки ПИК входит двадцать водных систем, две из которых являются тяжеловодными: тяжеловодного отражателя (ТВО) и жидкостного регулирования (ЖР).

Контур ЖР реактора ПИК относится к системе, важной для безопасной эксплуатации реактора. Он предназначен для отвода тепла от стенок корпуса реактора и контроля его целостности. Контур представляет собой кольцевую полость («щель ЖР») вокруг корпуса реактора, в зазорах которой циркулирует концентрированная тяжелая вода. Толщина щелевого зазора составляет 4 мм. Основные технологические параметры контура ЖР представлены в табл. 1.

Таблица 1

Параметр	Значение
Теплоноситель	D ₂ O
Объем контура, м ³	2.8
Расход теплоносителя в контуре, м ³ /ч	55
Расход теплоносителя на очистку, дм ³ /ч	50
Давление на входе в «щель» корпуса реактора, МПа	1.3
Давление в газовой полости компенсатора-дегазатора, МПа	0.8
Перепад давления между первым контуром и контуром ЖР, Па	3.7
Температура на входе в «щель ЖР», °С	50
Температура на выходе из «щели ЖР», °С	60

Технологические параметры контура ЖР

После заполнения системы ЖР тяжеловодным теплоносителем в конце декабря 2020 года был организован его химический контроль. Мониторинг контролируемых показателей проводился в период с января 2021 года по июнь 2022 года. Контролируемые химические показатели теплоносителя ЖР представлены в табл. 2.

Таблица 2

Показатель	Нормируемое значение
Удельная электрическая проводимость, мкСм/см	≤ 4
Водородный показатель (рН), ед. рН	5.5-8.0
Прозрачность, %	≥ 95
Массовая концентрация железа, мкг/дм ³	≤ 50
Массовая концентрация меди, мкг/дм ³	≤ 10
Массовая концентрация хлорид-ионов, мкг/дм ³	≤ 50
Массовая концентрация сульфат-ионов, мкг/дм ³	≤ 50

Нормируемые параметры теплоносителя контура ЖР

Показатель	Нормируемое значение
Массовая концентрация нитрат-ионов, мкг/дм ³	≤ 200
Общая жесткость, мкг-экв/дм ³	≤ 3
Удельная активность трития, Бк/дм ³	\leq 7.4 \cdot 10 ¹⁰ (2 Ки/дм ³)
Содержание дейтерия, % ат.	≥ 90

Проблема химического контроля теплоносителя контура ЖР

После заполнения контура ЖР возникли трудности с определением показателя общей жесткости в теплоносителе. Классическим методом определения общей жесткости в различных водных средах, в том числе и в теплоносителях различных ядерных установок, является титриметрический анализ. Он закреплен на уровне ГОСТов и отраслевых документов [1] и в течение многих лет используется в лаборатории производственного химического режима (далее – лаборатория) на реакторе ПИК. Разработанная в лаборатории методика измерений основана на комплексонометрическом титровании проб водных технологических сред трилоном Б с применением индикатора хромового темно-синего и близка к методике, применяемой для определения общей жесткости в технологических водных средах АЭС (с реакторами BBЭP и PБМК) и питьевых водах.

Суть возникшей проблемы заключается в том, что при анализе проб теплоносителя контура ЖР возникли сложности с определением конечной точки титрования (КТТ) из-за нечеткого цветового перехода вблизи точки эквивалентности (рис. 1). Согласно методике, титрование проб с концентрацией солей жесткости до 40 мкг-экв/дм³ должно выполняться методом обратного титрования, причем необходимо, чтобы цвет растворов менялся из сине-фиолетового (сиреневого) цвета в темный ярко-синий. В случае с реальными пробами теплоносителя ЖР достичь данного цветового перехода не удавалось.



Рис. 1 – Результат титрования пробы теплоносителя ЖР (слева) в сравнении с контрольной пробой (справа)

Мощным универсальным методом, часто используемым в настоящее время на объектах атомной энергетики для контроля примесей, в том числе и щелочноземельных элементов, является атомно-эмиссионная спектрометрия с индуктивно-связанной плазмой [1]. Ввиду отсутствия в лаборатории на реакторе ПИК такого оборудования, а также невозможности в ближайшей перспективе его приобретения, в качестве высокочувствительного инструментального метода использовалась ионная хроматография, которая в течение длительного времени применялась в лаборатории для определения анионного и катионного состава технологических водных сред.

Оценка примесного состава теплоносителя контура ЖР

Соли жесткости потенциально опасны тем, что дают твердые отложения (накипь) на теплопередающих поверхностях. Для контура ЖР – это теплообменник и, собственно, «щель ЖР». В теплообменнике температура теплоносителя ЖР меняется от 60 °C до 50 °C. «Щель ЖР» непосредственно контактирует с корпусом реактора ПИК. Температура теплоносителя в ней может достигать 60 °C и даже выше. Отложение солей жесткости начинается уже при 50 °C [2]. Это может привести к ухудшению теплопроводности стенок корпуса реактора ПИК и «щели ЖР». Поэтому точное определение содержания солей жесткости в теплоносителе ЖР является важной задачей.

Изначально предполагалось, что проблема, которая возникала при определении общей жесткости в водном теплоносителе ЖР, связана с присутствием примесей (мешающих ионов). Для оценки возможного выхода в теплоноситель примесей были проанализированы источники их поступления при эксплуатации.

Основные конструкционные материалы контура ЖР – нержавеющие аустенитные стали марок 12Х18Н10Т и 08Х18Н10Т [2]. Химический состав приведенных марок сталей указан в табл. 3 [3].

Таблица 3

Марка стали	12X18H10T		08X18H10T	
	С	0.12	С	0.08
	Si	0.8	Si	0.8
	Mn	2.0	Mn	2.0
	Ni	9.0–11.0	Ni	9.0–11.0
	S	0.02	S	0.02
	Р	0.04	Р	0.04
Химический состав, %	Cr	17.0–19.0	Cr	17.0–19.0
,	Cu	0.3	Cu	0.4
	Ti	0.8	Ti	0.7
	Мо	0.5	Мо	0.3
	V	0.2	V	0.2
	W	0.2	W	0.2
	Fe	65–69	Fe	65–70

Химический состав сталей марок 12Х18Н10Т и 08Х18Н10Т

Контур ЖР работает в радиационно-напряженных условиях: под азотной подушкой в условиях радиолиза теплоносителя вода не подвергается обескислораживанию. В связи с этим возникновение коррозионных процессов является наиболее вероятным фактором выхода примесей – продуктов коррозии. По данным табл. 3, исходя из химического состава нержавеющих сталей, можно сделать вывод о том, что наибольшее содержание приходится на Fe, Ni и Mn.

Для определения мешающих ионов (примесей) и подтверждения выдвинутых предположений был проведен атомно-эмиссионный анализ проб теплоносителя ЖР на атомно-эмиссионном спектрометре с индуктивно-связанной плазмой (модель iCAP Duo 6500, Thermo Scientific) [4]. Результаты анализа приведены в табл. 4.

Таблица 4

Наименование	Концентрация элементов, мг/дм ³		
элемента	Nº 1	Nº 2	
Ca	0.20 ± 0.05	0.20 ± 0.05	
Mg	0.050 ± 0.012	0.050 ± 0.012	
Ni	0.52 ± 0.08	0.51 ± 0.08	
Fe	0.27 ± 0.06	0.27 ± 0.06	
Mn	0.077 ± 0.018	0.077 ± 0.018	
Zn	$0.018 \pm 0,006$	0.025 ± 0.008	
Ba	0.0050 ± 0.0013	0.0047 ± 0.0012	
Na	< 0.5	< 0.5	
Cr	< 0.001	< 0.001	
Cd	< 0.001	< 0.001	
K	< 0.05	< 0.05	
Si	0.079 ± 0.019	0.084 ± 0.020	
Sr	0.0012 ± 0.0003	0.0013 ± 0.0003	
Cu	< 0.001	0.0015 ± 0.0006	
Al	< 0.01	< 0.01	
Pb	< 0.01	< 0.01	

Результаты атомно-эмиссионного анализа проб теплоносителя ЖР

По результатам анализа в пробе было обнаружено заметное количество Ni (520 мкг/дм³), Fe (270 мкг/дм³) и Mn (77 мкг/дм³). Это подтвердило выдвинутые предположения – примесями в теплоносителе являются продукты коррозии конструкционных материалов, использованных в контуре ЖР. Самая высокая массовая концентрация установлена для никеля (содержание Ni выше, чем Fe). Это можно объяснить тем, что растворимость гидролизованных продуктов коррозии никеля в воде выше (так, например, при 25 °C растворимость Fe(OH)₃ составляет $2.0 \cdot 10^{-7}$ г/дм³, a Ni(OH)₂ – $5.0 \cdot 10^{-3}$ г/дм³) [5].

Анализ результатов химического контроля теплоносителя контура ЖР (2021–2022 гг.) показал, что массовая концентрация железа в контуре была высокой и достигала 1500 мкг/дм³ (03.08.2021). Результаты определения массовой концентрации железа и общей жесткости в теплоносителе ЖР представлены на рис. 2. Влияния массовой концентрации железа на общую жесткость не было установлено. Определение жесткости было затруднено как при содержании железа 1500 мкг/дм³, так и при его содержании ≤ 10 мкг/дм³. Несмотря на это, было решено провести эксперимент с добавлением ионов железа (III) для подтверждения данного вывода.



Рис. 2 – Массовая концентрация железа и общая жесткость в теплоносителе ЖР в 2021–2022 гг.

Для определения общей жесткости в контуре ЖР было решено использовать альтернативный аналитический метод, представленный в лаборатории – метод ионной хроматографии. При проведении литературного поиска не было обнаружено представительных данных, описывающих определение общей жесткости данным способом. Однако ионохроматографический метод дает возможность расчетно-экспериментального определения данного показателя по результатам измерения суммы массовых концентраций ионов кальция и магния.

Расчет общей жесткости при ее определении ионохроматографическим методом

Результаты измерения массовой концентрации катионов на ионном хроматографе представляются в мкг/дм³, а общая жесткость в титриметрическом анализе – в мкг-экв/дм³. Для возможности сравнения результатов, полученных двумя методами, концентрации катионов кальция и магния, измеренные с помощью хроматографа, пересчитывались в мкг-экв/дм³. Молярная масса кальция составляет 40.08 г/моль, магния – 24.31 г/моль. Расчет эквивалентного веса катионов выполнялся по формуле 1:

 $m_{_{\mathcal{H}\mathcal{G}}}=\frac{M}{_{\mathcal{T}}},$

где

*m*_{экв} – эквивалентный вес катиона;

М-молярная масса катиона;

z – заряд катиона.

Эквивалентный вес Са составляет 20.04, а Mg – 12.16. Полученная на хроматографе концентрация катиона, выраженная в мкг/дм³, делилась на эквивалентный вес данного катиона. Итоговая общая жесткость в итоге равна сумме мкг-экв/дм³ катионов Mg и Ca (формула 2):

$$C_{o \delta u_{1}. w_{-}} = \frac{C_{Mg^{2+}}}{k_{1}} + \frac{C_{Ca^{2+}}}{k_{2}}, \qquad (2)$$

(1)
где

С_{общ ж} – концентрация общей жесткости, мкг-экв/дм³;

 C_{Mg}^{2+}, C_{Ca}^{2+} – массовые концентрации Mg и Ca, полученные с помощью хроматографа, мкг/дм³; $k_1 = 12.16; k_2 = 20.04$ – коэффициенты перевода для Mg и Ca, соответственно.

В лаборатории для ионохроматографических измерений был использован отечественный двухканальный ионный хроматограф марки «JETchrom», обеспечивающий совместное определение анионов (фторид, хлорид, нитрит, нитрат, сульфат) и катионов (натрий, аммоний, магний, кальций). Формирование аналитического сигнала осуществлялось с помощью кондуктометрического детектора CD-512, а разделение аналитов выполнялось на катионообменной колонке «Shodex» IC YS-50 (125×4.6 мм).

План эксперимента

Работы выполнялись на модельных растворах с добавлением и без добавления мешающих ионов титриметрическим и ионохроматографическим методами. Были выбраны две концентрации солей жесткости – 5 и 20 мкг-экв/дм³. Эксперимент был разбит на 4 этапа:

1 этап – определение сходимости результатов измерения общей жесткости титриметрическим и ионохроматографическим методами на модельных растворах без мешающих ионов;

2 этап – проверка влияния на определение общей жесткости ионов железа (III);

3 этап – проверка влияния на определение общей жесткости ионов никеля (II);

4 этап – проверка влияния на определение общей жесткости ионов марганца (II).

Модельные растворы готовились на основе химически обессоленной воды и государственных стандартных образцов (ГСО):

ГСО 7373-97 общей жесткости 10 °Ж (10 ммоль/дм³) с относительной погрешностью аттестованного значения ± 1.3 %;

ГСО 8032-94 состава водного раствора ионов железа (III) с массовой концентрацией 1.0 г/дм³ и относительной погрешностью аттестованного значения ±0.3 %;

ГСО 7785-2000 состава раствора ионов никеля с массовой концентрацией 1.0 мг/см³ и относительной погрешностью аттестованного значения ± 1.0 %;

ГСО 7266-96 состава раствора ионов марганца (II) с массовой концентрацией 1.0 мг/см³ и относительной погрешностью аттестованного значения ± 1.0 %.

Первый этап

Для проведения первого этапа измерений готовились растворы с различным содержанием солей жесткости в широком диапазоне концентраций: 0.8; 1.0; 2.0; 2.4; 3.4; 4.0; 4.75; 5.0 мкг-экв/дм³. Общее количество измерений общей жесткости на модельных растворах титриметрическим и ионохроматографическим методами составило 37. Количество совпадений результатов в пределах методической погрешности методов с модельным раствором у титриметрического метода составило 34, у метода ионной хроматографии – 21. Процент совпадений (% С) полученных результатов с заданными значениями концентрации модельных растворов для каждого метода рассчитывался по формуле 3:

$$(\%)C = \frac{N_x}{\sum N} \cdot 100\%,$$
 (3)

где

N_x – число совпадений результатов, полученных титриметрическим или ионохроматографическим методом, с концентрацией модельного раствора,

 $\sum N$ – общее число выполненных измерений.

На рис. 3 представлены результаты анализа одних и тех же модельных растворов титриметрическим и ионохроматографическим методами.



Рис. 3 – Результаты определения общей жесткости ионохроматографическим и титриметрическим методами

По итогам первого этапа установлено, что результаты титриметрического анализа совпали в пределах погрешности измерения с концентрациями приготовленных модельных растворов. Абсолютная погрешность измерения общей жесткости методом обратного титрования в зависимости от диапазона измерений составляет:

 ± 0.5 мкг-экв/дм³ для 0.5–20 мкг-экв/дм³,

 ± 2.0 мкг-экв/дм³ для 20–40 мкг-экв/дм³.

Погрешность ионохроматографических измерений концентрации катионов по применяемой методике – 20 % [9]. Для измерения общей жесткости необходимо определение двух катионов – кальция и магния, следовательно, каждого с погрешностью 20 %, поэтому погрешность определения общей жесткости однозначно будет выше.

Ниже приведен расчет погрешности определения солей жесткости с помощью ионного хроматографа «JETchrom» на основании ряда повторяющихся измерений с одинаковым значением общей жесткости. Расчетное среднее значение относительного отклонения составило 37 % (табл. 5), которое округлили до 40 % [10].

Расчет среднеквадратичного отклонения велся по формуле 4:

$$S_{K} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n} (X_{cp} - X_{u3M})^{2}}{n-1}},$$
(4)

где

n – число измерений,

 X_{cp} – среднее значение общей жесткости,

X_{изм} – расчетное значение общей жесткости, полученное на ионном хроматографе.

Абсолютное отклонение значения результата определялось по формуле 5:

$$\Delta X = t_{P,n} \cdot \frac{S_K}{\sqrt{n}},\tag{5}$$

где

 t_{Pn} – критерий Стьюдента при доверительной вероятности P = 0.95,

 S_{κ} – среднеквадратичное отклонение,

n – число измерений.

Таблица 5

Nº	Действительное значение общей жесткости, мкг-экв/дм ³ (Х _д)	Расчетное значение общей жесткости, мкг-экв/дм ³ (Х _{изм})	Количество измерений (n)	Среднее значение, мкг-экв/дм $^3(\mathrm{X_{cp}})$	Среднеквадратичное отклонение (S _к)	Коэффициент Стьюдента при доверительной вероятности P = 0.95 $(t_{p,n})$	Абсолютное значение погрешности (ΔХ)	Относительное значение погрешности (δХ)
	5	3						
	5	8	_	-	1 (7	0.571	1.74	25.12
	5	5	5	2	1.6/	2.5/1	1./6	35.13
	5	5						
	3	5						
	4	12						
	4	1.2						
2	4	3	7	2.9	1.33	2.447	1.23	30.70
_	4	3			1100	,	1.20	20170
	4	2.6						
	4	4						
	3	3						
2	3	1.4	1	26	0.0	2 1 0 2	1.27	12 12
3	3	3	4	2.0	0.8	3.162	1.2/	42.43
	3	3						
	1	0.6						
4	1	1.0	4	0.68	0.25	3.182	0.40	39.78
	1	0.4		0.00	0.20		00	
	1	0.7						
	Среднее	значение						37.0

Расчет погрешности измерения для ионного хроматографа «JETchrom»

Для титриметрического метода процент совпадений составил 92 %, для метода ионной хроматографии – 74 % (с учетом погрешности – 40 %), что указывает на преимущества использования в этом случае для определения общей жесткости комплексонометрического титрования как наиболее точного метода.

Второй этап

На втором этапе изучалось влияние ионов железа (III) на определение солей жесткости. В модельные растворы с общей жесткостью 5 мкг-экв/дм³ вводили добавки железа до следующих значений концентраций: 100, 300, 500, 1000, 1500 мкг/дм³ (рис. 4). По результатам титриметрического анализа установлено, что проблем с определением КТТ нет. Следовательно, железо (III) не оказывает мешающего влияния на проведение титриметрического анализа проб теплоносителя ЖР (рис. 5).



Рис. 4 – Модельные растворы с добавлением железа (III) при жесткости 5 мкг-экв/дм³ до титрования (А) и после титрования (Б):

1-контрольная проба, $2-100~{\rm mkr/дm^3},\,3-300~{\rm mkr/dm^3},\,4-500~{\rm mkr/dm^3},\,5-1000~{\rm mkr/dm^3},\,6-1500~{\rm mkr/dm^3}$



Рис. 5 – График зависимости результатов титриметрического анализа от добавки железа (III) при общей жесткости 5 мкг-экв/дм³

Третий этап

На третьем этапе исследовалось влияние ионов никеля на определение общей жесткости. Раствор ГСО ионов никеля добавлялся в модельные растворы до следующих значений концентраций: 10, 30, 50, 300 мкг/дм³ (для 5 мкг-экв/дм³) и 100, 200, 300, 400, 500 мкг/дм³ (для 20 мкг-экв/дм³) (рис. 6). Титрование велось на фоне контрольной пробы.



Рис. 6 – Модельные растворы с добавлением никеля при жесткости 5 мкг-экв/дм³ до титрования (А) и после титрования (Б):

```
1 – контрольная проба, 2 – 0 мкг/дм<sup>3</sup>, 3 – 10 мкг/дм<sup>3</sup>, 4 – 30 мкг/дм<sup>3</sup>, 5 – 50 мкг/дм<sup>3</sup>, 6 – 300 мкг/дм<sup>3</sup>
```

При титровании модельных растворов с содержанием никеля отмечался эффект аналогичный тому, который наблюдался при титровании реальных проб теплоносителя контура ЖР. Цвет конечных растворов заметно отличался от описанного в методике. Определить КТТ в растворах было затруднительно из-за нечеткого цветового перехода, поэтому процесс титрования завершался тогда, когда цвет растворов переставал визуально изменяться. Растворы с концентрацией никеля 300 мкг/дм³ и выше титровались уже прямым методом.

Таким образом, было установлено, что влияние никеля на процесс титрования существенно. Причем зависимость прямо пропорциональная: с увеличением концентрации никеля возрастают значения результатов титрования (рис. 7). Экспериментальная оценка показала, что для проб с содержанием солей жесткости не менее 20 мкг-экв/дм³ максимально допустимая концентрация никеля, при которой его присутствие не оказывает значимого влияния на результаты титриметрического анализа, равна 50 мкг/дм³. В области низких значений общей жесткости (менее 5 мкг-экв/дм³) влияние ионов никеля уже существеннее – начиная со значений его концентрации – 2.5 мкг/дм³.



Рис. 7 – Графики зависимости результатов титриметрического анализа от добавки никеля при общей жесткости: А) 5 мкг-экв/дм³, Б) 20 мкг-экв/дм³

Для уточнения степени влияния никеля на результаты титрования суммы Ca и Mg трилоном Б были рассчитаны значения суммы титруемых катионов (Ca + Mg + Ni). В таблице 6 представлены результаты расчета. Видно, что при больших концентрациях Ni результаты титрования (Ca + Mg + Ni) значительно завышаются.

Таблица б

Общая жесткость раствора, мкг-экв/дм ³	Концентрация никеля, мкг/дм ³	Экспериментальное значение, мкг-экв/дм ³	Расчетное значение, мкг-экв/дм ³
	0	5.0 ± 0.5	5.0
	10	5.4 ± 0.5	5.3
5	20	5.9 ± 0.5	5.7
5	30	6.4 ± 0.5	6.0
	40	7.0 ± 0.5	6.4
	50	7.5 ± 0.5	6.7
	0	20.0 ± 0.5	20.0
	100	40 ± 10	23.4
20	200	170 ± 10	26.9
20	300	570 ± 30	30.3
	400	730 ± 40	33.8
	500	800 ± 40	37.3

Сравнение экспериментальных и расчетных значений по титрованию (Ca + Mg + Ni)

Таким образом, в теплоносителе контура ЖР (таблица 4) присутствует высокое содержание Ni, который является мешающим ионом при титриметрическом определении общей жесткости. В данном случае применение метода ионной хроматографии оказывается наиболее преимущественным, несмотря на высокий разброс получаемых значений (погрешность ±40 %).

Четвертый этап

На четвертом этапе проводилось исследование влияния на определение общей жесткости ионов марганца. ГСО ионов марганца вводился в модельные растворы до следующих значений концентраций: 10, 50, 100, 300, 500 мкг/дм³ (для 5 мкг-экв/дм³) и 100, 200, 300, 400, 500 мкг/дм³ (для 20 мкг-экв/дм³) (рис. 8).



Рис. 8 – Модельные растворы с добавлением ионов марганца при жесткости 20 мкг-экв/дм³ до титрования (А) и после титрования (Б):

1 – контрольная проба, 2 – 0 мкг/дм³, 3 – 100 мкг/дм³, 4 – 200 мкг/дм³, 5 – 300 мкг/дм³, 6 – 400 мкг/дм³, 7 – 500 мкг/дм³

В результате установлено, что титрование растворов в присутствии марганца отличается от титрования с никелем: переход четкий и контрастный, трудностей с определением КТТ не установлено. Тем не менее, присутствие ионов марганца приводит к завышению результатов титриметрического анализа пропорционально содержанию марганца в растворе (рис. 9). Экспериментальные значения титрования (Ca + Mg + Mn) совпадают с расчетными в пределах погрешности измерения при любых концентрациях марганца (табл. 7).



Рис. 9 – Графики зависимости результатов титриметрического анализа от добавки марганца при общей жесткости: А) 5 мкг-экв/дм³, Б) 20 мкг-экв/дм³

Таблица 7

Общая жесткость раствора, мкг-экв/дм ³	Концентрация марганца, мкг/дм ³	Экспериментальное значение, мкг-экв/дм ³	Расчетное значение, мкг-экв/дм ³
	0	5.0 ± 0.5	5.0
	10	5.3 ± 0.5	5.4
5	20	5.6 ± 0.5	5.7
3	30	5.8 ± 0.5	6.1
	40	6.2 ± 0.5	6.5
	50	7.0 ± 0.5	6.9
	0	20.0 ± 0.5	20.0
	100	24.0 ± 0.5	23.7
20	200	28.8 ± 0.5	27.4
20	300	32.2 ± 0.5	31.1
	400	35.4 ± 0.5	34.8
	500	39.0 ± 0.5	38.5

Сравнение экспериментальных и расчетных значений по титрованию (Ca + Mg + Mn)

При этом ионохроматографический метод так же, как и в случае с никелем, позволяет определять общую жесткость в широком диапазоне содержания ионов марганца, поэтому его применение в таких случаях приемлемо, несмотря на высокую погрешность измерений.

Заключение

Исследования теплоносителя контура ЖР реактора ПИК и моделирующих его растворов показало значительное влияние никеля и марганца на результаты комплексонометрического титрования кальция и магния (общей жесткости). Присутствие ионов железа (III) заметного влияния на результат не оказывает.

Серии экспериментов, проведенных на модельных растворах с вводом и без ввода примесей (мешающих ионов никеля и марганца) установили, что даже на уровне их малых концентраций (начиная с уровня 2.5–5.0 мкг/дм³) влияние на результат определения общей жесткости оказывается заметным.

Показано, что приоритетным методом для определения общей жесткости является титриметрический анализ, если концентрация мешающих ионов (Ni и Mn) не превышает 50 мкг/дм³. Рост концентрации продуктов коррозии в водных растворах приводит к прямо пропорциональному завышению получаемых результатов титрования. Проведенные исследования такого влияния на модельных растворах позволили выявить закономерности, которые могут применяться в дальнейшей практике и учитываться при проведении анализа водных сред, содержащих высокие концентрации продуктов коррозии.

Таким образом, применимость ионохроматографического метода оказывается преимущественным при высоком содержании продуктов коррозии в водных растворах, но измерения в таких случаях сопряжены с высокой относительной погрешностью ±40 %.

Очевидна необходимость дальнейшего совершенствования обоих методов. Для ионохроматографического метода требуется поиск причин высокого разброса значений общей жесткости. Решение проблемы титриметрического определения общей жесткости, по-видимому, требует повышения селективности (специфичности) определения точки конца титрования, например, в режиме фотометрического или потенциометрического титрования.

Conclusion

Analysis of the coolant in the PIK reactor liquid regulation circuit and coolant modeling solutions has shown a significant effect of nickel and manganese on results of calcium and magnesium (total hardness) measurements by complexometric titration. Iron ions (III) have no noticeable influence on the results.

A series of model solution experiments with and without injection of impurities (interfering nickel and manganese ions) have demonstrated an observable effect of even small (beginning from $2.5-5.0 \ \mu g/dm^3$) concentrations of these ions on the result of the total hardness measurement.

It is shown that titrimetric analysis is the best method for determining the total hardness if the concentration of interfering ions (Ni and Mn) is not higher than 50 μ g/dm³. An increase in the concentration of corrosion products in water solutions causes a direct proportional overestimation of titration results. Analysis of this effect performed with model solutions has revealed relations that can be used in further practices and taken into account in analyses of aqueous media containing high concentrations of corrosion products.

Therefore, the application of the ion chromatographic method is preferred in the case of high content of corrosion products in water solutions, however, the relative error of measurements is large and equal to ± 40 % in this case.

The necessity of further improving the both methods is obvious. For the ion chromatographic analysis, finding of the causes of the large scattering in the total hardness values is required. The solution to the problem of total hardness determination by titrimetry probably requires enhancing the selectivity (specificity) of the determination of the titration end point.

Благодарности

Авторы выражают благодарность коллегам лаборатории аналитического контроля ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» Григорьевой Ирине Николаевне и Степановой Светлане Викторовне за проведение анализа проб теплоносителя контура ЖР методом атомно-эмиссионной спектрометрии.

Литература

- 1. СТО 1.1.1.07.003.0727-2009 «Лабораторный химический анализ водных сред атомных электростанций с водо-водяным энергетическим реактором. Методики выполнения измерений».
- 2. Шафлик, В. Современные системы горячего водоснабжения. Киев: ДП ИП «Таки справы», 2010. 316 с.
- ГОСТ 5632-2014. Легированные нержавеющие стали и сплавы коррозионностойкие, жаростойкие и жаропрочные. Марки: межгосударственный стандарт: издание официальное: взамен ГОСТ 5632-72: дата введения 2014-03-28 / Межгосударственный совет по стандартизации, метрологии и сертификации. – Москва: Стандартинформ, 2015. – 54 с.
- ПНДФ 14.1:2:4.135-98 «Количественный химический анализ вод. Методика выполнения измерений массовой концентрации элементов в пробах питьевой, природных, сточных вод и атмосферных осадков методом атомно-эмиссионной спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой. Москва, 1998.
- 5. Chem.ru Химический портал № 1 в России: официальный сайт. URL: https:// market.chem.ru/ (дата обращения: 10.10.2022).
- Родинков, О. В. Основы метрологии физико-химических измерений и химического анализа: учебно-методическое пособие / О.В. Родинков, Н.А. Бокач, А.В. Булатов.– Санкт-Петербург: ВВМ, 2009. – 146 с.

УДК 621.039.526; 621.039.586

Взаимодействие расплава тяжёлого жидкометаллического теплоносителя с поступающей в его объём водой

Часть 1. Эксперимент

А.А. Сулацкий, В.И. Альмяшев, Е.В. Шевченко, С.А. Витоль, Е.В. Крушинов, С.Ю. Котова, Е.К. Каляго, В.Р. Булыгин, Е.Б. Шуваева, А.В. Тимчук, Е.М. Беляева, М.В. Девяткин

ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», Сосновый Бор, Ленинградская область, Россия

Аннотация

Работа посвящена экспериментальному исследованию взаимодействия тяжёлого жидкометаллического теплоносителя (расплав свинцово-висмутовой эвтектики) с водой при аварии с разрывом трубки парогенератора. Получены экспериментальные данные по изменению давления в экспериментальной установке и температуры среды в парогазовой атмосфере над расплавом при подаче дискретных порций воды под уровень расплава.

Ключевые слова: тяжёлый жидкометаллический теплоноситель, расплав свинцововисмутовой эвтектики, взаимодействие расплава с водой, экспериментальное исследование.

Interaction of molten heavy liquid metal coolant with inflow water

Part I. Experiment

A.A. Sulatsky, V.I. Almjashev, E. V. Shevchenko, S.A. Vitol, E.V. Krushinov, S.Yu. Kotova, E. K. Kalyago, V. R. Bulygin, E.B. Shuvaeva, A. V. Timchuk, E. M. Belyaeva, M.V. Deviatkin

FSUE "Alexandrov NITI", Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia

Abstract

The paper describes an experimental study of the interaction between heavy liquid metal coolant (molten lead-bismuth eutectic) and water in the steam generator tube rupture accident. Experimental data are obtained for pressure variation in the test setup and steam-gas temperature above the melt after introduction of discrete volumes of water into the melt.

Key words: heavy liquid metal coolant, molten lead-bismuth eutectic, interaction of melt with water, experimental study.

Введение

Одним из возможных сценариев аварии реакторной установки (РУ) с тяжёлым жидкометаллическим теплоносителем (ТЖМТ) является разрыв трубопроводов второго контура теплоносителя и попадание воды в объём расплава теплоносителя первого контура. При этом

вследствие большого по сравнению с температурой кипения воды перегрева металлического расплава поверхность воды на интерфейсе с расплавом окружена паровой пленкой. Случайные, вызванные каким-либо возмущением, пульсации давления могут спровоцировать локальные или более пространственно протяженные разрушения или утончения паровой пленки и диспергирование водяных фракций. Это, в свою очередь, приводит к увеличению площади теплообмена воды с жидким металлом, вызывающему ещё большую парогенерацию с возможностью инициирования так называемого обращённого парового взрыва [1].

В настоящее время отсутствуют достаточно обоснованные доказательства того, что при течи трубок парогенератора и проникновении воды в объём расплава ТЖМТ обязательно инициируется обращенный паровой взрыв (взрыв, обусловленный поступлением воды в расплав). Однако нет достаточных оснований и для утверждения, что паровой взрыв в таких условиях не возможен. В ряде расчетно-теоретических работ [2÷4] делается вывод, что обращенный паровой взрыв маловероятен. Необходимо отметить, что существуют и экспериментальные работы, в которых утверждается, что в условиях подачи воды (в жидкой фазе) в объём расплавленного свинца или свинцово-висмутовой эвтектики паровых взрывов не возникает [5, 6]. В данных работах были предложены и отрабатывались на действующих макетах технологии опреснения воды, генерации водорода и углубленной переработки нефтепродуктов при прямом контакте воды или жидких углеводородов с расплавом тяжёлого металла (Pb или Pb-Bi). Вода в макетах промышленных установок подавалась с постоянным малым расходом на дно большого объёма расплавленного металла. При этом паровых взрывов не наблюдалось. Условия подачи воды в расплав ТЖМТ в работах [5, 6] значительно отличаются от условий аварии на РУ с разрывом трубок парогенератора. Поэтому вопрос о возможности инициирования парового взрыва при такой аварии остается открытым.

Целями данной работы являются:

- экспериментальная проверка возможности инициирования парового взрыва при поступлении воды под уровень расплава ТЖМТ;
- получение экспериментальных данных о динамике давления и температуры при вводе в расплав ТЖМТ порций воды заданной массы;
- обобщение экспериментальных данных и разработка теоретической модели взаимодействия расплава ТЖМТ с поступающей в его объём водой.

В данной статье представлена первая часть работы с описанием экспериментальной установки, методики проведения эксперимента и первичными результатами экспериментального исследования. В последующих статьях будут представлены результаты анализа экспериментальных данных, их обобщение и математическая модель процесса взаимодействия воды со свинцово-висмутовым расплавом.

Экспериментальная установка и методика проведения опытов

Для исследования процессов, происходящих при введении порций воды в объём ТЖМТ, в ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» была спроектирована и изготовлена экспериментальная установка «Расплав-CB1». В состав установки входят системы нагрева, измерений и видеонаблюдения и экспериментальная ячейка, непосредственно в которой проводились опыты (см. рис. 1). В качестве ТЖМТ была использована свинцово-висмутовая эвтектика (Pb – 44, Bi – 56 масс. %). Атмосфера над расплавом – паровоздушная.





Рис. 1. Схема экспериментальной ячейки установки «Расплав-CB1» (а), ячейка в сборе со снятой теплоизоляцией расширительного объёма (б):

1 – подставка теплоэлектроизолирующая; 2 – подошва; 3 – металлический донный рассекатель;
 4 – ампула свинцовая; 5 – термопары (тип К) верхняя и нижняя в расплаве; 6 – уровень расплава;
 7 – расширительный объём; 8 – датчик давления «KELLER» (тип PR-25/8797.1);
 9 – термопара (тип L) для датчика давления; 10 – система сброса давления и продувки;
 11 – регулируемый ленточный нагреватель; 12 – теплоизоляция; 13 – порт видеонаблюдения;
 14 – блок видеонаблюдения; 15 – шток

Экспериментальная ячейка установки (в дальнейшем – установка) состоит из тигельного участка, предназначенного для получения и удержания расплава, и расширительного объёма (поз. 7) величиной 2.6·10⁻³ м³. Тигель представляет собой трубу из нержавеющей стали высотой 400 мм и диаметром 60 мм, соответственно, приваренную к дискообразной подошве (поз. 2), размещённой на теплоэлектроизолирующей подставке (поз. 1). На дне тигля расположен донный рассекатель (поз. 3), приваренный к подошве коаксиально оси тигля и предназначенный для быстрого разрушения ампул с водой. Масса свинцово-висмутовой эвтектики в установке составляла 8.3 кг, что образовывало ванну расплава глубиной ≈300 мм без введённого штока и ≈ 320 мм при введении штока на полную длину. Глубина, на которой происходил разрыв ампулы, составляла 300 (±20) мм.

Нагрев и плавление свинцово-висмутовой эвтектики осуществлялись за счёт джоулева тепла, выделяемого в регулируемом ленточном нагревателе (поз. 11). Температура расплава контролировалась двумя термопарами типа К, размещёнными в верхней и нижней частях расплава (поз. 5). Для снижения тепловых потерь тигельный участок установки и расширительный объём были теплоизолированы минеральной ватой (поз. 12).

В экспериментах необходимо было обеспечить поступление в расплав свинцово-висмутовой эвтектики воды, желательно с минимальной долей паровой фазы. Для обеспечения этого подача воды в объём расплава осуществлялась с помощью заполненных недогретой до температуры насыщения водой свинцовых ампул (поз. 4), размещенных на конце стального штока (поз. 15), который вручную быстро вдвигался в расплав. Были использованы несколько типов свинцовых ампул, описанных в [2, 3] (см. рис. 2). Стандартная длинная ампула представляла собой свинцовый цилиндрический стакан высотой 50 мм, с наружным диаметром 12 мм и толщиной стенок, донца и крышки 1 мм (см. рис. 2 а÷д). Были использованы также укороченные ампулы высотой 17.5 мм (см. рис. 2 е) и секционированные ампулы высотой 59 мм, внутреннее пространство которых было разбито горизонтальными перегородками на три изолированных полости одинакового объёма (см. рис. 2 ж). Кроме того, были опробованы два типа разрушения ампул: 1) с помощью донного рассекателя и 2) плавлением и/или разрывом за счет роста внутреннего давления в ампуле (при этом глубина разрушения ампулы несколько снижалась по сравнению с разрывом о донный рассекатель – до 255 (±25) мм). Во всех экспериментах температура воды в ампулах была близка к 15 °C.



a)÷д) – стандартные длинные ампулы, содержащие различное количество воды,
 e) укороченная ампула, ж) секционированная ампула

Изменение давления в расширительном объёме фиксировалось с помощью датчика давления «KELLER» (тип PR-25/8797.1) (рис. 1 а, поз. 8) и высокоскоростной системы регистрации измерений. Температура парогазовой среды в расширительном объёме контролировалась термопарой типа L (поз. 9). Давление в расширительном объёме перед вводом в расплав ампулы с водой было равно атмосферному (≈ 10⁵ Па).

После проведения процедуры регистрации экспериментальных параметров процесса шток извлекался из установки. При этом в расширительном объёме сбрасывалось давление до атмосферного, и установка после достижения необходимого температурного уровня расплава становилась готовой к следующему измерительному циклу с использованием другой ампулы с водой. Сброс избыточного давления в расширительном объёме мог также производиться без извлечения штока из установки через систему сброса давления и продувки (поз. 10).

Процесс внутри установки контролировался через порт видеонаблюдения (поз. 13) блоком видеонаблюдения (поз. 14), состоящим из видеокамеры со светодиодной подсветкой. Однако, испытания первых же ампул с водой показали, что видеорегистрация малоинформативна, поэтому в дальнейшем данная система не использовалась. Регистрация экспериментальных параметров процесса осуществлялась с помощью информационно-измерительной системы.

Всего в ходе исследования были проведены два эксперимента: CB-01 и CB-03. В эксперименте CB-01 было использовано 16 ампул с массами воды 0.5, 1, 2 и 3 г при температуре расплава от ~ 300 до 350 °C. При этом были применены оба способа разрушения ампул: как при помощи донного рассекателя, так и плавлением/разрывом за счет роста внутреннего давления. В эксперименте CB-03 было использовано 23 ампулы с массами воды 0.5, 1, 1.5, 2 и 3 г при температуре расплава от 210 до 290 °C. Так как в эксперименте CB-01 не было выявлено достоверных различий результатов двух способов разрушения ампул, то в эксперименте CB-03 использовался только один метод, а именно – плавлением/разрывом за счет роста внутреннего давления.

Экспериментальные результаты

Прежде всего, следует отметить отсутствие паровых взрывов во всех проведенных опытах. Это не является основанием для вывода об их принципиальной невозможности, но справедливо, по меньшей мере, для условий экспериментов.

Для иллюстрации полученных характеристик взаимодействия воды с расплавом ТЖМТ на рис. 3÷12 для опытов с различными ампулами представлены в качестве примеров несколько первичных экспериментальных результатов в виде зависимостей от времени давления в расширительном объёме, температур парогазовой среды и расплава. Кривые на рисунках: 1 (чёрная непрерывная кривая, относящаяся к левой оси ординат) – изменение избыточного давления в рабочей ячейке; 2 (синяя штриховая кривая, относящаяся к правой оси ординат) – показания термопары типа L, размещённой приблизительно на середине высоты расширительного объема рабочей ячейки; 3 – (красная непрерывная кривая, относящаяся к правой оси ординат) – показания термопары типа K, размещённой в расплаве на высоте 150 мм от дна ванны расплава; 4 – (сиреневая штрих-пунктирная кривая, относящаяся к правой оси ординат) – показания термопары типа K, размещённой в расплаве на высоте 252 мм от дна ванны расплава. Указанные кривые обрываются, как правило, непосредственно перед моментом извлечения штока из экспериментальной установки.

Количественные параметры и результаты проведённых экспериментов CB-01 и CB-03 (объёмы ампул, масса воды, начальные температуры среды в расширительном объёме, экстремумы температур расширительного объёма и расплава, величина пика давления) приведены ниже в таблице. Следует отметить, что в качестве величины пика давления в случае, если их было несколько, принималась величина первого пика.

Отметим некоторые качественные и отчасти количественные результаты экспериментов. Во-первых, наиболее общим качественным результатом, наблюдавшимся при вводе всех ампул с водой в экспериментах СВ-01 и СВ-03, был резкий рост давления в расширительном объёме и следующие за ним максимум температуры паровоздушной среды и минимум температуры расплава. Интервал времени от момента ввода ампулы в расплав до максимума давления составлял от 0.1 до 1.2 с. В случае разрыва ампулы о донный рассекатель среднее значение этого интервала было несколько меньше, чем в случае расплавления ампулы – 0.38 с против 0.64 с, соответственно. Запаздывание экстремумов температур от максимума давления составляет от приблизительно секунды для температуры паровоздушной среды до нескольких секунд для температуры расплава – среды, имеющей во много раз большую интегральную теплоёмкость. Также следует отметить, что в силу высокой теплоёмкости расплава в момент максимума давления температура расплава остаётся фактически постоянной и равной её значению до ввода ампулы в расплав. Особенно это заметно при разрыве ампул о донный рассекатель (см. рис. 3, 5, 9, 11). В последнем случае и температура паровоздушной среды в расширительном объёме (в месте расположения термопары) не успевает измениться сколько-нибудь заметным образом.

Вторым важным качественным результатом экспериментов является то, что величина пика давления в среднем монотонно возрастает с увеличением массы вводимой в расплав воды и почти не зависит от способа разрушения ампулы. Однако разброс значений максимума давления, даже при одной и той же вводимой массе воды и неизменном способе разрушения ампулы, весьма значителен и зачастую превышает различия максимума при смене способа.



Рис. 3. – Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 3 (стандартная длинная) с содержанием воды 0.5 мл с разрывом ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-01)



Рис. 4. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 1 (стандартная длинная) с содержанием воды 0.5 мл без разрыва ампулы о донный рассекатель (экспериментСВ-03)



Рис. 5. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 8 (стандартная длинная) с содержанием воды 1 мл с разрывом ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-01)



Рис. 6. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 5 (стандартная длинная) с содержанием воды 1 мл без разрыва ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-03)



Рис. 7. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 7 (стандартная длинная) с содержанием воды 1.5 мл без разрыва ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-03)



Рис. 8. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 10 (секционированная) с содержанием воды 1.5 мл без разрыва ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-03)



Рис. 9. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 10 (стандартная длинная) с содержанием воды 2 мл с разрывом ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-01)



Рис. 10. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 13 (стандартная длинная) с содержанием воды 2 мл без разрыва ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-03)



Рис. 11. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 14 (стандартная длинная) с содержанием воды 3 мл без разрыва ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-01)



Рис. 12. Изменение избыточного давления и температур во время введения в расплав ампулы № 23 (стандартная длинная) с содержанием воды 3 мл без разрыва ампулы о донный рассекатель (эксперимент CB-03)

Таблица

Результаты экспериментального исследования взаимодействия воды со свинцово-висмутовым расплавом

іксимум	ыточного ия (ΔР), кПа	10	36 ± 3	83 ± 7	54 ± 2	0.5 ± 2.5	7.5 ± 2.5	02 ± 8	79 ± 5	79 ± 4	79 ± 3	75 ± 5	6.5 ± 3.5	89 ± 4	3.5 ± 3.5	.05 ± 5	3.5 ± 3.5	42 ± 2	47 ± 5	42 ± 5	2.10
Ŭ,	изоі давлен					32	57	-				-	12		15	[7]	15	-			
а расплава, °С	после ввода воды в расплав (Т _{m,min})	6	318.5 ± 1.5	264 ± 14	274.5 ± 9.5	299 ± 7	272 ± 2	256.5 ± 16.5	265 ± 7	260 ± 13	275 ± 7	260.5 ± 12.5	260 ± 5	262.5 ± 2.5	260 ± 4	257.5 ± 11.5	259.5 ± 14.5	250 ± 22	224.5 ± 2.5	235.5 ± 3.5	
Температур	до ввода воды в расплав ($T_{m,0}$)	8	350	336	325	325	327	308	299	297	300	300	303	300	302	302	302	300	247	254	
в расширительном fe, °C	после ввода воды в расплав (Т _{с.max})	7	280	302	297	297	265	287	278	274	275	276	283	284	285	285	286	265	240	249	
Температура среды объём	до ввода воды в расплав (T _{e,0})	6	275	267	263	257	241	244	247	244	248	247	244	244	242	241	237	228	210	228	000
Масса воды в	ампуле (m _w), г	5			0.5				-	_			2			c	n			0.5	
Объём	aMIIYIIbI $(V_a), cM^3$	4		3.77		5	1.22						3.77							4.08	
No	amitynbi	3	-	2	n	4	5	9	7	~	6	10	11	12	13	14	15	16	-	5	•
E	lect	2								10	CB-01									CB-03	
		-	1	2	ω	4	5	9	7	∞	6	10	11	12	13	14	15	16	17	18	\$

Исследование процессов при тяжёлых авариях на объектах атомной энергетики

						r											-				
Максимум	изоыточного давления (ΔР), кПа	10	82.5 ± 5.5	79 ± 5	74 ± 3	94 ± 9	86 ± 4	105 ± 7	83.5 ± 6.5	73 ± 7	75 ± 6	121 ± 7	118.5 ± 5.5	$133.5\pm\!\!6.5$	139 ± 4	194 ± 8	120 ± 5	102 ± 15	82 ± 4	112.5 ± 7.5	186.5 ± 3.5
а расплава, ∘С	после ввода воды в расплав (Т _{m.min})	6	239	236	236.5 ± 3.5	234	234 ± 3	240	234.5 ± 3.5	237 ± 1	228 ± 3	231 ± 1	240	237	229.5 ± 1.5	231 ± 1	226.5 ± 3.5	277 ± 5	280.5 ± 2.5	279.5 ± 4.5	253.5 ± 26.5
Температур	до ввода воды в расплав ($T_{m,0}$)	∞	262	255	258	257	259	262	257	251	251	249	260	255	250	251	252	306	309	310	305
в расширительном de, °C	после ввода воды в расплав (T _{е,max})	7	251	245	250	247	243	245	248	248	244	244	247	245	245	244	245	294	293	300	295
Температура среды объём	до ввода воды в расплав $(T_{e,0})$	9	235	235	237	238	238	239	237	240	240	240	240	240	240	240	240	280	290	290	290
Масса воды в	ампуле (m _w), г	5				4	C.I		1.5			5			ç	n		1	1.5	2	3
Объём	amiiyiibi $(V_a), cM^3$	4			00 1	4.00				3.53						00 1	4.00				
Nē	amitynbi	3	4	5	6	7	8	6	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	22	23
E	lecr	2										CB-03									
2	No.	-	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36	37	38

ТЕХНОЛОГИИ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ЖИЗНЕННОГО ЦИКЛА ЯЭУ / № 1 (31) / 2023

Также необходимо отметить, что при вводе некоторых ампул стандартной длины (с массой воды 1÷3 г) наблюдались несколько следующих друг за другом (с интервалом в доли секунды) пиков давления приблизительно одной «высоты» (см. рис. 5, 7). Это было вызвано, по-видимому, тем обстоятельством, что разрушение ампулы происходило в нижней её части, и не вся вода сразу приходила в контакт с расплавом. Тем более этот эффект наблюдался в случае секционированных ампул, где интервал между следующими друг за другом пиками давления составлял до 10 с (см. рис. 8).

Следующий за максимумом спад давления обусловлен в первые секунды после максимума смешением образовавшегося пара с относительно холодной паровоздушной средой в расширительном объёме, а на последующем более длительном промежутке времени – принципиально не устранимой течью в месте ввода штока с ампулой в экспериментальную установку.

Заключение

В данной работе:

- приведены результаты выполненного экспериментального исследования взаимодействия расплава с водой, порционно подаваемой в объём расплава свинцово-висмутовой эвтектики. При этом обращённый паровой взрыв во всех проведённых экспериментах не наблюдался;
- показано, что основным параметром, влияющим на величину пика давления, является масса вводимой в расплав воды;
- показано, что влияние температуры расплава на величину пика давления менее существенно, а сам пик давления имеет место при фактически неизменных температурах расплава и парогазовой среды в расширительном объёме.

Conclusion

This paper:

- presents results of the experimental study on the interaction between the water that is introduced batchwise into the molten lead-bismuth eutectic and the melt. In all the experiments, no steam explosions induced by water injection into the melt were observed.
- shows that the mass of water introduced into the melt is the key parameter influencing the pressure peak value;
- shows that the influence of the melt temperature on the pressure peak value is less significant and the pressure peak itself is observed at actually constant temperatures of the melt and steam-gas atmosphere in the expansion volume.

Литература

- 1. *Мелихов В.И.* Гидродинамика и теплофизика паровых взрывов / В.И. Мелихов, О.И. Мелихов, С.Е. Якуш. М.: ИПМех РАН, 2020. 276 с.
- SIMMER-III and SIMMER-IV Safety Code Development for Reactors with Transmutation Capability / W. Maschek [et al.] // CD-ROM Proceedings of Mathematics and Computation, Supercomputing, Reactor Physics and Biological Applications. – Avignon, France, 2005. – P. 14.

- Maschek W. Some New Results on the SGTR Problem in EFIT / W. Maschek, S. Wang, M. Flad // EUROTRANS WP5.1. – Brussels, 2006. – P. 23.
- 4. *Леонов В.Н.* Расчетно-экспериментальные исследования процессов, сопровождающих аварию «межконтурная неплотность парогенератора» и рекомендации к схемным и конструктивным решениям реакторной установки со свинцовым теплоносителем: дис. ... канд. техн. наук (05.14.03). Нижний Новгород: НГТУ, 2012. 217 с.
- 5. Применение теплоносителей Рb и Pb-Bi в новых технологиях переработки твердых, жидких и газообразных сред / В.В. Ульянов, В.А. Гулевский, П.Н. Мартынов [и др.] // Изв. ВУЗов. Ядерная энергетика. 2012. № 4. С. 102–109.
- Современные вопросы и задачи технологии тяжелых жидкометаллических теплоносителей (свинец, свинец-висмут) / П.Н. Мартынов, Р.Ш. Асхадуллин, Ю.И. Орлов [и др.] // Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях (ТЖМТ-2013): доклад на IV науч.-практическая конф. Обнинск. 23–26 сентября 2013.

УДК 621.039.586

Исследование высокотемпературного взаимодействия материалов, содержащих МАХ-фазы, с химически прототипным расплавом активной зоны ВВЭР

В.И. Альмяшев^{1,2,3}, В.Л. Столярова^{3,4}, Е.В. Крушинов¹, А.А. Сулацкий¹, Е.Б. Шуваева^{1,2}, А.В. Тимчук^{1,2}, Е.В. Шевченко¹, С.Ю. Котова¹, С.А. Витоль¹, Е.К. Каляго¹, В.Р. Булыгин¹, Е.М. Беляева¹, И.Е. Арлашкин⁵, С.Н. Перевислов^{3,5}, Д.П. Данилович⁵, В.Б. Хабенский¹

 ¹ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия
 ²ФГАОУ ВО «Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет им. В.И. Ульянова (Ленина) «ЛЭТИ», Санкт-Петербург, Россия
 ³ФГБУН «Институт химии силикатов им. И.В. Гребенщикова РАН», Санкт-Петербург, Россия
 ⁴ Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург, Россия
 ⁵ФГБОУ ВО «Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет)», Санкт-Петербург, Россия

Аннотация

В статье приведены результаты экспериментального исследования высокотемпературного взаимодействия химически-прототипного расплава активной зоны BBЭP с перспективными материалами оболочек твэлов на основе MAX-фаз и композиционной керамики MAX-фаза – ZrO₂. Экспериментальное исследование проведено в ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» на установке «Расплав-3» с использованием технологии индукционной плавки в холодном тигле. Образцы до и после взаимодействия, а также закристаллизованный расплав исследовались методами сканирующей электронной микроскопии, рентгеноспектрального микроанализа и флуоресцентного анализа, а также рентгеновской дифрактометрии. Обнаружено, что расплав активной зоны хорошо смачивает исследованные образцы, однако большинство образцов не потеряло форму и не претерпело фазовых и микроструктурных изменений за исключением заполнения расплавом порового пространства в тонком приповерхностном слое.

Ключевые слова: МАХ-фазы, композиционная керамика МАХ-фаза – ZrO₂, индукционная плавка, холодный тигель, кориум, металлический расплав, субокисленный оксидный расплав, высокотемпературное взаимодействие, устойчивость в расплаве кориума.

Investigation of high temperature interaction between materials containing MAX phases and chemical prototype of VVER core melt

V.I. Almjashev^{1,2,3}, V.L. Stolyarova^{3,4}, E.V. Krushinov¹, A.A. Sulatsky¹, E.B. Shuvaeva^{1,2}, A.V. Timchuk^{1,2}, E.V. Shevchenko¹, S.Yu. Kotova¹, S.A. Vitol¹, E.K. Kalyago¹, V.R. Bulygin¹, E.M. Belyaeva¹, I.E. Arlashkin⁵, S.N. Perevislov^{3,5}, D.P. Danilovich⁵, V.B. Khabensky¹

¹FSUE "Alexandrov NITI", Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia
 ²Saint Petersburg Electrotechnical University "LETI", Saint Petersburg, Russia
 ³Institute of Silicate Chemistry, Russian Academy of Sciences (ISC RAS), Saint Petersburg, Russia
 ⁴Saint Petersburg University, Saint Petersburg, Russia
 ⁵Saint Petersburg State Institute of Technology, Saint Petersburg, Russia

Abstract

The paper presents results of an experimental investigation in the high temperature interaction between chemical prototype of VVER core melt and candidate materials for fuel cladding based on MAX phases and MAX phase – ZrO₂ composite ceramics. The experimental investigation was carried out at FSUE "Alexandrov NITI" in the Rasplav-3 setup using the cold crucible induction melting technology. The samples before and after the interaction, as well as the crystallized melt, were studied by scanning electron microscopy, X-ray spectral microanalysis and fluorescence analysis, as well as X-ray diffractometry. It was found that the core melt well wets the studied samples, however, most of the samples did not lose their shape and did not undergo phase and microstructural changes, except for the filling with the melt of the pore space in a thin near-surface layer.

Key words: MAX phases, MAX phase $-ZrO_2$ composite ceramics, induction melting, cold crucible, corium, metal melt, suboxidized oxide melt, high temperature interaction, tolerance in core melt.

Введение

Дальнейшее развитие атомной энергетики невозможно без решения ряда важных задач, касающихся повышения безопасности АЭС. Существенного изменения уровня безопасности возможно достичь только созданием и внедрением новых видов ядерного топлива, регулирующих стержней и других материалов реакторного пространства, позволяющих увеличить ресурс, свести к минимуму количество радиоактивных отходов, повысить надежность работы реакторной установки в режиме штатной эксплуатации и устойчивость в случае аварийных ситуаций на АЭС [1].

К концу XXI века мощность производства ядерной энергии в мире при существующих трендах развития атомной энергетики должна вырасти в 3–4 раза. Для обеспечения устойчивого роста необходимо переходить на реакторы IV поколения, которые в настоящее время существуют в виде проектов, предполагающих, в частности, использование новых видов топлива, новых материалов регулирующих стержней, новых теплоносителей, эксплуатацию с более высоким уровнем выгорания, минимизацию ядерных отходов и затрат, повышение энергоэффективности, устойчивости работы и безопасности как в штатных режимах эксплуатации, так и в случае нештатных инцидентов и запроектных аварий, включая тяжелые аварии с расплавлением активной зоны и разрушением корпуса реактора. Однако проекты реакторов IV поколения будут доступны для коммерческого строительства не ранее, чем к 2030 году и только при широкомасштабной поддержке научных разработок, включая создание и исследование функциональной пригодности новых реакторных материалов, включая ядерное топливо нового поколения [2–7].

При проектировании активной зоны ядерного реактора необходимо использовать компромисс между многочисленными конструктивными ограничениями, такими как максимальная экономия нейтронов, рабочая температура и термическая эффективность реактора, т.е. это комплексная многопараметрическая проблема, в которой важен как выбор отдельных материалов, так и рассмотрение вопросов их совместимости. Для топливной композиции выбор делящихся веществ невелик (первичные – ²³⁵U, ²³⁸U и ²³²Th и вторичные – ²³³U и ²³⁹Pu), однако возможно многообразие химических форм их использования (металлическое, оксидное, нитридное, карбидное, силицидное топливо, а также их комбинации). И наибольшую вариативность, хотя с существенными нейтронно-физическими и прочностными ограничениями, допускает материал топливной оболочки. В связи с этим при разработке новых видов устойчивого к авариям топлива (ATF-топлива) на передний край встают именно проблемы выбора материала оболочки, который, с одной стороны, должен

обеспечивать устойчивость к высокотемпературной деградации, а с другой стороны – быть одновременно и прочен, и пластичен и устойчив к длительным радиационным воздействиям. Удовлетворить этому набору требований, противоречащих друг другу, возможно либо в рамках композиционного материала, либо выбрав такой материал, который сочетает в себе свойства нескольких классов материалов. В качестве потенциального кандидата на решение этой комплексной проблемы подходят так называемые MAX-фазы, которые рассматриваются пока только как материал покрытий традиционных циркониевых оболочек [1, 8, 9].

В последнее время к МАХ-фазам наблюдается большой практический интерес с точки зрения создания материалов для применения не только в атомной промышленности, но и в машиностроении и аэрокосмической области [10, 11]. МАХ-фазы представляют собой семейство тройных слоистых соединений, отвечающих условной формуле $M_{n+1}AX_n$ (n = 1, 2, 3...), где М – переходный *d*-металл (Sc, Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta); А – *p*-элемент (Si, Ge, Al, Ga, S, P, Sn, As, Cd, I, Tl, Pb); Х – углерод или азот [10÷20]. Слоистые тройные карбиды и нитриды *d*- и *p*-элементов (МАХ-фазы) проявляют уникальное сочетание свойств, характерных как для металлов, так и для керамики:

- малую плотность;
- высокую тепло- и электропроводимость;
- высокую прочность;
- превосходную коррозионную стойкость в агрессивных жидких средах;
- стойкость к высокотемпературному окислению и термическим ударам;
- лёгкость механической обработки;
- высокую температуру плавления;
- термическую и химическую стабильность при температурах до 1550 °С и выше [10, 11].

Следовательно, такие материалы могут быть оптимальными материалами оболочек твэлов ядерных реакторов [7, 17, 18].

В частности, МАХ-фаза, отвечающая формуле Zr_2AlC может быть рассмотрена в качестве материала оболочки твэлов атомных реакторов поколений III+ и IV, которая может превзойти свойства материалов на основе карбида циркония [19]. Выбор именно этой фазы обусловлен присутствием циркония и алюминия – элементов, имеющих хорошие ядерно-физические свойства и широко использующимися в атомной энергетике. В частности, цирконий, до настоящего времени, является основным материалом оболочек твэлов, несмотря на потенциальную серьезную опасность, возникающую в случае его перегрева и окисления. Замена его на цирконийсодержащее более устойчивое при повышении температуры соединение – один из путей преодоления отмеченного недостатка. Поэтому целесообразно получить экспериментальную информацию по высокотемпературному взаимодействию материала, содержащего фазу Zr_2AlC , с расплавом кориума.

Для исследования влияния химического состава и структурно-фазового состояния покрытий оболочек твэлов ядерных реакторов на стойкость к тепловому удару и трещиностойкость, а также на изменение этих параметров в штатных и аварийных условиях работы ядерных реакторов целесообразно рассмотреть высокотемпературное поведение композиций соединений, отвечающих составу MAX-фаз (Ti,Zr)_{n+1}(Al,Si)C_n, где n = 1, 2, с диоксидом циркония, в частности, взаимодействие таких композитов с расплавом кориума. В данной статье приведены результаты экспериментального исследования высокотемпературного взаимодействия химически-прототипного расплава активной зоны BBЭP с перспективными материалами оболочек твэлов на основе MAX-фаз и композиционной керамики MAX-фаза – ZrO_2 .

Эксперимент

Для проведения экспериментальных исследований использованы образцы карбидной керамики, отвечающей по интегральному составу формуле Zr_3AlC_2 , содержащей по результатам рентгенофазового анализа MAX-фазу состава Zr_2AlC , а также образцы композиционной керамики, содержащей MAX-фазы различного состава и диоксид циркония. Интегральный состав этих образцов, а также присвоенные им для проведения экспериментов номера, приведены в табл. 1. Отметим, что нумерация и состав образцов была одинакова во всех экспериментах.

Таблица 1

Номер	Состав по синтезу,	Элем	ментный соста	ав по РСМА,	ат.%	Фазовый состав
образца	мол.%	Zr	Al	Ti	Si	по РФА
1÷9	$100 \operatorname{Zr}_3 \operatorname{AlC}_2$	81.6±0.5	18.4±0.5	-	_	$ZrC, Al_3Zr_2, Al_2Zr, Zr_2AlC$
11	50 Ti_2SiC : 50 ZrO_2	28.0±0.5	0.8±0.2	57.8±0.3	13.4±0.3	m-ZrO ₂ , TiC, SiC
12	50 $\operatorname{Zr}_{3}\operatorname{AlC}_{2}$: 50 ZrO_{2}	78.0±1.6	22.0±1.6	-	-	ZrC, m -ZrO ₂ , Al ₂ Zr, α -Al ₂ O ₃
13	50 Ti_2AlC : 50 ZrO_2	26.3±0.7	16.4±0.3	54.5±1.0	2.8±0.2	m-ZrO ₂ , ZrO, α -Al ₂ O ₃ , TiC
14	50 $Zr_2AlC : 50 ZrO_2$	85.1±0.7	12.1±0.8	_	2.7±0.1	$ZrC, m-ZrO_2, \alpha-Al_2O_3$
15	$50 \overline{\text{Ti}_3 \text{SiC}_2 : 50 \text{ ZrO}_2}$	20.9±1.1	1.7±0.3	58.9±1.2	18.6±0.6	<i>m</i> -ZrO ₂ , Ti ₅ Si ₃ , TiC, SiC
16	50 $\overline{\text{Ti}_{3}\text{AlC}_{2}: 50 \text{ ZrO}_{2}}$	17.6±0.4	24.0±0.7	56.3±0.7	2.1±0.3	TiC, m -ZrO ₂ , Al ₂ Zr, α -Al ₂ O ₃

Состав и номера образцов, использованных в серии экспериментов MAX-1÷MAX-4

На рис. 1 представлен типичный вид образцов. Образцы карбидной керамики, содержащей MAX-фазу состава Zr₂AlC представляли собой спеченные методом горячего прессования закреплённые в цилиндрических держателях штапики с сечением 4×4 мм и длиной 30...40 мм (рис. 1а). Образцы композиционной керамики, содержащей MAX-фазы различного состава и диоксид циркония, представляли собой спеченные методом горячего прессования фрагменты керамики различной формы (рис. 1б), закреплявшиеся в цилиндрических держателях.



Рис. 1. Вид образцов для проведения экспериментов серии МАХ, закрепленные в держатели: а) образцы карбидной керамики, содержащей МАХ-фазу состава Zr₂AlC; б) образцы композиционной керамики, содержащей МАХ-фазы различного состава и диоксид циркония В качестве первого шага работ был проведен входной контроль образцов. Элементный анализ исходных образцов проводили рентгеноспектральным флуоресцентным методом на вакуумном спектрометре СПЕКТРОСКАН МАКС-GVM. Для определения содержания элементов в образцах использовали как метод регрессионного анализа, так и метод фундаментальных параметров. Для количественного анализа проб из металлических слитков использовали метод фундаментальных параметров (МФП), выбор которого объясняется отсутствием стандартных (эталонных) образцов, включающих в свой состав полный набор элементов, характерных для каждого компонента, используемого в планируемом эксперименте. Определение микроструктуры и элементного состава образцов проводили методами СЭМ/РСМА в инжиниринговом центре СПбГТИ(ТУ). Исследование образцов осуществляли на сканирующем электронном микроскопе TESCAN VEGA3 (Чешская Республика). Рентгенофазовый анализ проводили по данным рентгеновской дифрактометрии, полученным на дифрактометре Rigaku SmartLab 3 (Си K_{α} -излучение).

Для составления материального баланса исходные материалы до плавки были отмаркированы и тщательно взвешены для последующего сравнения с образцами, выдержанными в прототипном расплаве. В зависимости от вида образцов и их массы взвешивание осуществляли на аналитических весах Shimadzu AUW-220D с точностью взвешивания 0.1 мг, и лабораторных весах Сартогосм CE6202-C с точностью взвешивания 10/100 мг. При составлении материального баланса суммарная масса оценивалась с точностью не хуже 1 мг.

Эксперименты проводились на установке «Расплав-3» с высокочастотным генератором колебательной мощностью 100 кВт и частотой тока 120 кГц. В зависимости от типа расплава использовался либо тигель из диоксида циркония (см. рис. 2), помещённого в холодный водоохлаждаемый медный тигель с теплоизоляцией между ними в виде засыпки порошком ZrO₂ – для металлического расплава (см. рис. 3), либо просто холодный водоохлаждаемый тигель – для оксидного расплава (см. рис. 4).



Рис. 2. Керамический тигель из диоксида циркония, применённый в экспериментах с металлическим расплавом (МАХ-2 и МАХ-4):

а) размеры тигля и схема его термометрирования;

б) схема размещения керамического тигля в холодном водоохлаждаемом тигле:

1 – керамический тигель; 2 – холодный тигель; 3 – порошок из диоксида циркония;

4 - керамическое дно из диоксида циркония



Рис. 3. Схема установки «Расплав-3» в экспериментах МАХ-2 и МАХ-4:

1 – баллон с Ar; 2 – регулятор газового потока Bronkhorst; 3 – электрохимические датчики кислорода; 4 – шахта для подачи образцов; 5 – шахта пирометра с кварцевым окном; 6 – пирометр; 7 – видеокамера; 8 – индуктор;
 9 – фильтр средней площади; 10 – измеритель газового потока Honeywell; 11 – гидрозатвор



Рис. 4. Схема установки «Расплав-3» в эксперименте МАХ-3 1 – кварцевое окно; 2 – водоохлаждаемая крышка печи; 3 – кварцевая обечайка; 4 – трубки секций тигля; 5 – индуктор; 6 – оксидный расплав кориума; 7 – донный многосекционный водоохлаждаемый калориметр; 8 – шахта пирометра, порт для ввода стали в расплав; 9 – пирометр; 10 – видеокамера; 11 – порт для подачи образцов в печь

Состав шихты, загружаемой в тигель в экспериментах MAX-2 и MAX-4 с металлическим расплавом: U – 17 г, Zr – 17 г, сталь 08Х18Н10Т – 305 г (всего – 339 г). Общий вид загрузки показан на рис. 5.



Рис. 5. Вид загрузки тигля в экспериментах МАХ-2 и МАХ-4

Состав шихты, загружаемой в тигель в эксперименте MAX-3 с оксидным расплавом: UO_{2.37} – 1362 г, ZrO₂ – 245 г, Zr – 134 г, – 1800 г, что обеспечивало атомное соотношение урана и циркония 1,2 и индекс окисленности кориума C-70.

Процедуры экспериментов были достаточно просты. После наплавления ванны расплава и выхода на заданный температурный уровень расплава производилось погружение в расплав образца керамики и его выдержка в расплаве. В экспериментах с металлическим расплавом (MAX-2 и MAX-4) температура расплава менялась в пределах от 1700 (\pm 10) до 2300 (\pm 20) °C, а времена экспозиции образцов в расплаве менялись от 5 до 600 с. В эксперименте с оксидным расплавом (MAX-3) температура расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплава составляла 2490 (\pm 30) °C, а времена экспозиции образцов в расплаве были равны 1 и 2 с.

Каждый использованный в экспериментах образец перед вводом его в расплав взвешивался (вместе с держателем). После извлечения образца из расплава процедура взвешивания повторялась. Как правило, наблюдался прирост массы за счёт визуально наблюдаемой корки из налипшего на образец расплава. Прирост массы колебался от десятых долей грамма до 2 г (при максимальной экспозиции 600 с и температуре металлического расплава 1950 (±50) °C). Типичный вид образцов после извлечения из расплава показан на рис. 6, 7. Только в нескольких случаях наблюдалась незначительная убыль массы образцов.



Рис. 6. Вид керамических образцов, содержащих MAX-фазу Zr₂AlC, после проведения эксперимента MAX-2 (образцы № 1÷7)



Образцы № 5, 6 (MAX)



Рис. 7. Вид керамических образцов из эксперимента МАХ-3

В ходе пост-тест исследований были изготовлены продольные (вертикальные) резы использованных в экспериментах образцов. В ходе их изучения было выявлено, что материал образцов не подвергся сколь либо значительным изменениям и деструкции. Характерные виды вертикальных резов образцов представлены на рис. 8.

Для сравнения параметров и условий проведения экспериментов МАХ-2, МАХ-3, МАХ-4 в табл. 2 представлены составы образцов, время выдержки и температуры расплава до и после погружения образцов.



Рис. 8. Вертикальные резы керамических образцов № 2 – № 7, содержащих MAX-фазу Zr₂AlC, из эксперимента MAX-2

Таблица 2

kcne- Mehr AX-2	o6p.		MACON TOWNED			F	Co		
X-2 X	oop.		иасса держате	ия с ооразцом, г	Впемя	I emite	ература, 🗸 С		
X-2	L	Состав образца по синтезу, мол.%	до эксп.	после эксп.	выдержки, с	до ввода	после извлечения	Приме	чания
X-2			66.607	67.152	5	1001			
X-2	7		67.420	67.892	20	1630	1/13		
X-2	ю	I	68.294	68.196	60	1713	1655	1	
	4	$100 \mathrm{Zr}_{3} \mathrm{AlC}_{2}$	68.288	68.209	60	1907	1931	1	
	5	1	71.106	71.259	300	1937	1913	1	
(·	9	1	68.274	71.530	300	2190	2162	1	
	2	I	68.394	69.471	120	2210	2397		
	u u		69.759	68.878	5	2460	2230	часть образца упала в расплав	до погружения
	n	$100 \text{ Zr}_3 \text{AIC}_2$	68.878	69.530	1	2514	2499	ввели повторно остаток образца	расплавом расплавом 1 мин. после –
	9	I	68.914	69.503	2	2499	2527	I	1 мин
X-3	11	50 Ti,SiC : 50 ZrO,	66.645	66.913	1	2501	2496	I	
	12	$50 \text{ Zr}_3 \text{AlC}_3 : 50 \text{ ZrO}_3$	68.694	69.409	1	2496	2509	1	винажилоп оп
-	13	50 Ti_2AlC : 50 ZrO_2	65.911	65.868	2	2509	2501	ввод 2 раза по 1 с	выдержка над
	14	$50 \mathrm{Zr}_{2}\mathrm{AlC}: 50 \mathrm{ZrO}_{2}$	68.565	69.269		2501	2514	1	расплавом 30 с,
1	15	$50 \text{ Ti}_3 \text{SiC}_2 : 50 \text{ ZrO}_2$	69.323	69.842	1	2514	2494	1	после – 1 мин
1	16	$50 \text{ Ti}_3 \text{AlC}_2 : 50 \text{ ZrO}_2$	66.213	66.812	1	2494	2512	Ι	
	7		68.764	70.310	120	2056	1902		
~	8	$100 \text{ Zr}_{3} \text{AlC}_{2}$	68.357	69.385	300	1956	1938		
	6		67.741	69.748	600	2042	1980		
-	11	$50 \text{ Ti}_2 \text{SiC} : 50 \text{ ZrO}_2$	68.586	66.904		2079	1978		
X-4	12	$50 \text{ Zr}_3 \text{AlC}_2$: 50 ZrO_2	68.748	69.093		2020	1967		
1	13	50 $Ti_2AIC : 50 ZrO_2$	66.069	63.327	000	1967	2058	образец упа	л в расплав
1	14	$50 \mathrm{Zr}_{2}\mathrm{AlC}: 50 \mathrm{ZrO}_{2}$	68.245	68.412	0000	2058	2102		
1	15	$50 \text{ Ti}_3 \text{SiC}_2 : 50 \text{ ZrO}_2$	69.029	69.153		2127	2056		
1	16	50 Ti,AlC, : 50 ZrO,	66.437	66.557	1	2056	2108		

Исследование процессов при тяжёлых авариях на объектах атомной энергетики

На рис. 9 приведены микрофотографии некоторых образцов после взаимодействия с расплавом кориума в экспериментах MAX-2 и MAX-3.



Рис. 9. Микрофотографии СЭМ: а) образца № 5, содержащего МАХ-фазу Zr₂AlC, из эксперимента МАХ-2, б) композиционных образцов МАХ-ZrO, № 14-16 из эксперимента МАХ-3

В итоге, можно сделать вывод, что как образцы карбидной керамики, содержащей МАХфазу состава Zr₂AlC, так и образцы композиционной оксикарбидной керамики показали чрезвычайную устойчивость в расплаве как металлической составляющей, так и оксидной составляющей кориума вплоть до 2500 °C.

Помимо исследования взаимодействия карбидной и композитных керамик с расплавом в эксперименте МАХ-3 были проведены измерения температуры ликвидус расплава с помощью метода визуального политермического анализа в печи с индукционной плавкой в холодном тигле. Измеренная температура ликвидус субокисленного расплава составила 2431 (±9) °C.

Заключение

Впервые проведены экспериментальные высокотемпературные исследования процессов взаимодействия химически прототипных металлической и оксидной составляющих расплава кориума реакторов BBЭP с карбидной керамикой, содержащей MAX фазу Zr_2AlC , а также с композиционной керамикой на основе диоксида циркония и MAX-фаз Zr_3AlC_2 , Zr_2AlC , Ti_3SiC_2 , Ti_2SiC , Ti_3AlC_2 и Ti_2AlC . Пост-тестовые физико-химические исследования продуктов взаимодействия образцов рассматриваемой керамики и кориума позволили проиллюстрировать высокую химическую устойчивость как карбидного, так и композиционного материалов, содержащих MAX-фазу состава Zr_2AlC , в расплаве как металлического, так и оксидного кориума вплоть до температуры 2500 °C. Таким образом, материалы на основе MAX-фазы состава Zr_2AlC могут быть рекомендованы для дальнейшего изучения в качестве покрытий и самостоятельных элементов активной зоны, принимая во внимание их исключительную физико-химическую устойчивость в расплаве активной зоны ядерных реакторов.

Conclusion

For the first time, experimental high-temperature studies of the processes of interaction of chemically prototype metallic and oxidic parts of the corium melt of VVER reactors with carbide ceramics containing the Zr_2AlC MAX phase, as well as with composite ceramics based on zirconium dioxide and the Zr_3AlC_2 , Zr_2AlC , Ti_3SiC_2 , Ti_2SiC , Ti_3AlC_2 and Ti_2AlC MAX phases were carried out. Post-test physicochemical studies of the products of interaction between samples of the considered ceramics and corium made it possible to illustrate the high chemical stability of both carbide and composite materials containing the MAX phase of the Zr_2AlC composition in the melt of both metallic and oxidic corium up to a temperature of 2500 °C. Thus, materials based on the MAX phase of the composition Zr_2AlC can be recommended for further study as coatings and independent elements of the core, taking into account their exceptional physical and chemical stability in the melt of the core of nuclear reactors.

Благодарности

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант РФФИ-Росатом №20-21-00056). При выполнении физико-химического анализа использовано оборудование инжинирингового центра СПбГТИ(ТУ).

Литература

- Accident Tolerant Fuel Concepts for Light Water Reactors // Proceedings of a Technical Meeting Held at Oak Ridge National Laboratories, United States of America, 13–16 October 2014. 2016. P. 1–384.
- Jacoby M. Coming back to nuclear energy // Chem. Eng. news. 2009. V. 87, N 34. P. 14–18.
- 3. *Azevedo C.R.F.* Selection of fuel cladding material for nuclear fission reactors // Eng. Fail. Anal. 2011. V. 18, N 8. P. 1943–1962. doi: 10.1016/j.engfailanal.2011.06.010.
- Weber W.J. A review of radiation effects in solid nuclear wast forms / W.J. Weber, F.P. Roberts // Nucl. Technol. – 1983. – V. 60, N 2. – P. 178–198. – doi: 10.13182/ NT83-A33073.5.
- Hinds D. Next-generation nuclear energy: The ESBWR / D. Hinds, C. Maslak // Nucl. News. - 2006. - V. 49, N 1. - P. 35-40.
- Oka Y. Conceptual design study of advanced power reactors / Y. Oka, S. Koshizuka // Prog. Nucl. Energy. - 1998. - V. 32, N 1÷2. - P. 163÷177. - doi: 10.1016/S0149-1970(97)00014-0.
- Abu-Khader M.M. Recent advances in nuclear power: A review // Prog. Nucl. Energy. 2009. – V. 51, N 2. – P. 225–235. – doi: 10.1016/j.pnucene.2008.05.001.
- *Rebak R.B.* Accident Tolerant Materials for Light Water Reactor Fuels. Elsevier, 2020. – 236 p.
- 9. Odette R. Structural alloys for nuclear energy applications / R. Odette, S.J. Zinkle. Elsevier, 2019. 673 p.
- Сметкин А.А. Свойства материалов на основе МАХ-фаз (обзор) / А.А. Сметкин, Ю.К. Майорова // Вестник ПНИПУ. Машиностроение, материаловедение. – 2015. – V. 17, N 4. – Р. 120–138. – doi: 10.15593/2224-9877/2015.4.09 УДК 621.762.
- Barsoum M.W. The M_{N+1}AX_N phases: A new class of solids: Thermodynamically stable nanolaminates // Prog. Solid State Chem. – 2000. – V. 28, N 1–4. – P. 201–281. – doi: 10.1016/S0079-6786(00)00006-6.

- 12. *Медведева Н.И.* Моделирование электронного строения, химической связи и свойств тройного силикокарбида Ti₃SiC₂ / Н.И. Медведева, А.Н. Еняшин, А.Л. Ивановский // Журнал структурной химии. 2011. V. 52, N 4. P. 806–822.
- Сметкин А.А. Механосинтез и характеристики порошковых композиций Ti-Si и Ti-Si C-C / А.А. Сметкин, М.Н. Каченюк // Керамика и композиционные материалы: тез. докл. V Всерос. конф. – 2004. – С. 115.
- 14. Preparation of Ti₃SiC₂ / P.V. Istomin, A.V. Nadutkin, Y.I. Ryabkov, B.A. Goldin // Inorg. Mater. 2006. V. 42, N 3. P. 250–255. doi: 10.1134/S0020168506030071.
- 15. Jeitschko W. Die Kristallstruktur von Ti₃SiC₂-ein neuer Komplexcarbid-Typ / W. Jeitschko, H. Nowotny // Monatshefte f
 ür Chemie. 1967. V. 98, N 2. P. 329–337. doi: 10.1007/BF00899949.
- Nickle J.J. Gasphasen-abscheidung im systeme Ti-Si-C / J.J. Nickle, K.K. Schweitzer, P. Luxenberg // J. Less-Common Met. – 1972. – V. 26. – P. 335–353.
- 17. Zhang Z.F., Sun Z.M., Hashimoto H. Deformation and fracture behavior of ternary compound Ti₃SiC₂ at 25–1300 °C / Z.F. Zhang, Z.M. Sun, H. Hashimoto // Mater. Lett. 2003. V. 57, N 7. P. 1295–1299. doi: 10.1016/S0167-577X(02)00974-6.
- 18. El-Raghy T. Processing and mechanical properties of Ti3SiC2: I. Reaction path and microstructure evolution / T. El-Raghy, M.W. Barsoum // J. Am. Ceram. Soc. – 2004. – V. 82, N 10. – P. 2849–2854. – doi: 10.1111/j.1151-2916.1999.tb02166.x.
- Колесников С.И. Определение оптимальных условий синтеза в тройной системе Ti–Al–N для получения продуктов, содержащих наибольшее количество MAX-фаз / С.И. Колесников, А.А. Кондаков // Башкир. хим. журн. – 2012. – V. 19, N 4. – P. 162–165.
- 20. Perevislov S.N. The Ti₃SiC₂ MAX phases as promising materials for high temperature applications: Formation under various synthesis conditions / S.N. Perevislov, T.V. Sokolova, V.L. Stolyarova // Materials Chemistry and Physics. 2021. V. 267. Art. 124625. DOI: 10.1016/j.matchemphys.2021.124625.

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 научнотехническом 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 <u>www.niti.ru</u> 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 и 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 в алфавитном порядке (по фамилиям авторов или заглавиям 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 12.05.2023. Бумага офсетная. Гарнитура Таймс. Печать цифровая. Формат 60×90/8. Усл.-печ. л.11,75. Заказ 49169. 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