#### 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

№ 3 (33) 2023

Сосновый Бор

#### ТЕХНОЛОГИИ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ЖИЗНЕННОГО ЦИКЛА ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

Периодический рецензируемый научно-технический сборник

№ 3 (33) 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.

#### 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**, чл.-корр. 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.

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

**А.В. Ельшин**, доктор технических наук, профессор, 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:  $\Pi$ И №  $\Phi$ C77-58865 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 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** 

№ 3 (33) 2023

Sosnovy Bor

#### NUCLEAR PROPULSION REACTOR PLANTS. LIFE CYCLE MANAGEMENT TECHNOLOGIES

#### Collection of papers. Periodical edition

#### № 3 (33) 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

 $\textbf{V.I. Almjashev,} \quad \text{Cand. Sc. (Chemistry), Alexandrov Research Institute of Technology, Sosnovy Bor.} \\$ 

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

Saint Petersburg.

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

V.V. Gusarov, corresponding member of RAS, Dr. Sc. (Chemistry), Grebenshchikov Silicate Chemistry

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), Professor, 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.

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

Sosnovy Bor.

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

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

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

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

Saint Petersburg.

O.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  $\Pi U$  No.  $\Phi C77-58865, 28.07.14$ .

#### **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 № 3 (33) 2023

Предисловие главного редактора
Стендовые испытания транспортных ЯЭУ
В.А. Василенко, А.Л. Дмитриев, И.Е. Батягин, Л.И. Спиридонова
Расчетно-экспериментальное исследование возможности эксплуатации паропроизводящих установок ЯЭУ транспортного назначения при разгерметизации системы компенсации давления первого контура
О.Б. Самойлов, А.И. Романов, В.Ю. Галицких, А.А. Захарычев, О.А. Морозов, А.В. Митрофанов, В.Ю. Силаев
Анализ опыта эксплуатации активных зон атомных ледоколов первого поколения. База данных в обоснование и развитие новых атомных ледоколов
и плавучих энергоблоков
Моделирование и исследование нейтронно-физических и теплогидравлических процессов объектов с ЯЭУ Р.В. Фоменков, А.А. Ефимов, Р.Э. Зинатуллин
Апробация математической модели выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок с топливом дисперсионного типа
А.М. Панкин, В.С. Костарев, А.А. Калютик, Р.Ю. Легких Разработка программного обеспечения для обработки показаний датчиков прямого заряда системы внутриреакторного контроля в переходных режимах
Химические технологии обеспечения жизненного цикла ЯЭУ, радиохимические и материаловедческие исследования
С.Н. Орлов, А.А. Змитродан, А.М. Алешин, П.Н. Зуев, В.В. Кривобоков
Совершенствование технологии дезактивации оборудования ядерных энергетических установок со свинцово-висмутовым теплоносителем
Исследование процессов при тяжелых авариях на объектах атомной энергетики
А.В. Тимчук, М.Е. Кургузкина, А.А. Андронова, Е.Б. Шуваева, В.И. Альмяшев
Анализ фазовых равновесий в системе материалов активной зоны реакторов с ТЖМТ и нитридным топливом
Информация для авторов
Правила подачи материалов в редакцию

#### Contents\*

#### Issue № 3 (33) 2023

Chief editor's foreword
Land testing of propulsion reactor prototype plants
V.A. Vasilenko, A.L. Dmitriev, I.E. Batiagin, L.I. Spiridonova
Computational and experimental investigations of the possibility to operate steam generation systems of nuclear propulsion prototype plants when pressurizer system integrity is lost
O.B. Samoilov, A.I. Romanov, V.Yu. Galitskikh, A.A. Zakharychev, O.A. Morozov, A.V. Mitrofanov, V.Yu. Silaev
Analysis of Operating Experience of First Generation Nuclear Icebreaker Cores.  Database in Support of Development of New Nuclear Icebreakers  and Floating Nuclear Power Units
Modeling and research of neutron and thermal-hydraulic processes in propulsion reactor plants R.V. Fomenkov, A.A. Efimov, R.E. Zinatullin
Verification of a mathematical model describing release of long-lived gaseous fission products from leaking spent dispersion fuel assemblies
A.M. Pankin, V.S. Kostarev, A.A. Kalyutik, R.Yu. Legkih
Development of software intended to interpret readings from self-powered neutron detectors of in-core instrumentation system for transient conditions
Chemical technologies in propulsion reactor plant life cycle management, radiochemical and material research
S.N. Orlov, A.A. Zmitrodan, A.M. Aleshin, P.N. Zuev, V.V. Krivobokov
Improvement of equipment decontamination technology for propulsion reactor plants with lead-bismuth coolant
Research of severe accidents in nuclear
A.V. Timchuk, M.E. Kurguzkina, A.A. Andronova, E.B. Shuvaeva, V.I. Almjashev
Analysis of phase equilibria in the system of core materials of reactors with HLMC
and nitride fuel
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 очередном выпуске научно-технического сборника № 3 (33) 2023 продолжена публикация статей по актуальным тематическим направлениям.

В статьях, публикуемых в рубрике «Стендовые испытания транспортных ЯЭУ», обсуждаются вопросы безопасности и эффективности использования реакторных установок транспортных ЯЭУ в различных режимах эксплуатации.

В статье «Расчетно-экспериментальное исследование возможности эксплуатации паропроизводящих установок ЯЭУ транспортного назначения при разгерметизации системы компенсации давления первого контура» приведены результаты расчетно-экспериментальных исследований по эксплуатации транспортной ЯЭУ с реактором водо-водяного типа при разгерметизации системы компенсации давления первого контура.

В статье «Анализ опыта эксплуатации активных зон атомных ледоколов первого поколения. База данных в обоснование и развитие новых атомных ледоколов и плавучих энергоблоков» рассмотрены основные физико-технические характеристики, условия ядерной безопасности и данные по отработавшему ядерному топливу серийных ледокольных активных зон типа 14-10-3M, включая вопросы эксплуатации перспективных ледокольных активных зон типа 14-5/04УM с увеличенным энергоресурсом.

В рубрике «Моделирование и исследование нейтронно-физических и теплогидравлических процессов объектов с ЯЭУ» публикуются статьи с результатами, актуальными для повышения эффективности системы внутриреакторного контроля реакторной установки и анализа результатов внереакторной дефектации отработавших тепловыделяющих сборок.

В статье «Апробация математической модели выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок дисперсионного типа» приведены результаты экспериментальной проверки математической модели выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок с топливом дисперсионного типа, используемой для описания результатов внереакторной дефектации.

В статье «Разработка программного обеспечения для обработки показаний датчиков прямого заряда системы внутриреакторного контроля в переходных режимах» обсуждается возможность разработки и использования программных средств для определения коэффициентов динамики нейтронного потока по показаниям датчиков прямого заряда системы внутриреакторного контроля, по аналогии с определением величин реактивности по выходным сигналам ионизационных камер системы управления и защиты ядерного реактора.

В рубрике «Химические технологии обеспечения жизненного цикла ЯЭУ, радиохимические и материаловедческие исследования» публикуется статья «Совершенствование технологии дезактивации оборудования ядерных энергетических установок со свинцово-висмутовым теплоносителем» с результатами исследования эффективности рецептур для дезактивации оборудования первого контура ЯЭУ со свинцовым и свинцово-висмутовым теплоносителем. Приведен перечень дезактивирующих рецептур, рекомендованных авторами для дезактивации оборудования ЯЭУ со свинцово-висмутовым теплоносителем.

В рубрике «Исследование процессов при тяжелых авариях на объектах атомной энергетики» публикуется статья «Анализ фазовых равновесий в системе материалов активной зоны реакторов с ТЖМТ и нитридным топливом». В статье приведены данные

о фазовых равновесиях в многокомпонентной системе Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-U-N, составляющей основу материалов, используемых в активной зоне перспективных реакторов нового поколения с тяжелым жидкометаллическим теплоносителем. Приводимая информация актуальна при анализе процессов, протекающих в условиях тяжелых аварий на реакторах, содержащих указанные материалы.

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

д.т.н., профессор

В.А. Василенко

#### Chief editor's foreword

Issue № 3 (33) 2023, 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 areas of interest.

Papers published under the subject heading "Land testing of propulsion reactor prototype plants" discuss issues of the safety and efficiency of using nuclear propulsion reactor plants in different operating conditions.

The paper "Computational and experimental investigations of the possibility to operate steam generation systems of nuclear propulsion plants when the primary pressurizer system integrity is lost" presents results of computations and experimental operation of a pressurized water reactor plant under conditions where the pressurizer system integrity is lost.

The paper "Analysis of operating experience of first generation nuclear icebreaker cores. Database in support of development of new nuclear icebreakers and floating nuclear power units" reviews the basic physical and technical characteristics, nuclear safety conditions, and spent fuel data of commercial icebreaker reactor cores of 14-10-3M type. Some issues on operation of advanced icebreaker cores of 14-5/04UM type with increased power lifetime are considered.

Under the subject heading "Modeling and research of neutron and thermal-hydraulic processes in nuclear propulsion reactor plants", papers are published reporting results that are important to enhance the effectiveness of in-core instrumentation systems and improve the description of results obtained from ex-core leak detection of spent fuel assemblies.

The paper "Verification of a mathematical model describing release of long-lived gaseous fission products from leaking spent dispersion fuel assemblies" presents results of an experimental verification of the mathematical model for release of long-lived gaseous fission products from leaking spent dispersion fuel assemblies that is used to describe results of ex-core leak detection.

The paper "Development of software intended to interpret readings from self-powered neutron detectors of in-core instrumentation system for transient conditions" discusses the possibility to develop and use software for determining the coefficients of neutron flux dynamics from readings of self-powered neutron detectors of in-core instrumentation system, which are calculated by analogy with determination of reactivity values from output signals of ion chambers in the reactor control and protection system.

Under the subject heading "Use of chemical technologies in propulsion reactor plant life cycle management, radiochemical and material research", paper "Improvement of equipment decontamination technology for propulsion reactor plants with lead-bismuth coolant" is published. The paper reports results of studies on the effectiveness of chemical compositions for decontaminating the primary circuit equipment of nuclear propulsion reactor plants with lead and lead-bismuth coolants. The list of decontamination solutions recommended by the paper's authors for cleaning the equipment of nuclear propulsion reactor plants with lead and lead-bismuth coolants is presented.

Under the subject heading "Research of accident processes in nuclear", paper "Analysis of phase equilibria in the system of core materials of reactors with HLMC and nitride fuel" is published the article presents data on phase equilibria in the multicomponent Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-U-N system that is a base for materials used in the cores of new generation advanced nuclear reactors with a heavy liquid metal coolant. The main materials in the cores of such reactors are nitride fuel, steel cladding of fuel elements, lead or lead-bismuth coolant.

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".

Chief Editor of the collection of papers "Nuclear propulsion reactor plants. Life cycle management technologies", scientific coordinator "Alexandrov NITI"

Prof. Dr. V.A. Vasilenko

# Расчетно-экспериментальное исследование возможности эксплуатации паропроизводящих установок ЯЭУ транспортного назначения при разгерметизации системы компенсации давления первого контура

В.А. Василенко, А.Л. Дмитриев, И.Е. Батягин, Л.И. Спиридонова

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

#### Аннотация

В статье приведены результаты расчетно-экспериментальных исследований по эксплуатации паропроизводящей установки (ППУ) стенда-прототипа транспортной ядерной энергетической установки (ЯЭУ) с реактором водо-водяного типа при разгерметизации системы компенсации давления первого контура. Экспериментально и по результатам численного моделирования подтверждена возможность эксплуатации ППУ с различным количеством отключенных групп баллонов системы газа высокого давления, вплоть до отключения всех групп баллонов системы газа высокого давления от первого контура. Полученные результаты актуальны для обоснования возможности эксплуатации ППУ транспортных ЯЭУ при разгерметизации системы компенсации давления первого контура, а также для расширения границ использования ППУ транспортных ЯЭУ.

**Ключевые слова:** паропроизводящая установка, реактор водо-водяного типа с водой под давлением, система газа высокого давления, компенсатор объема, маневрирование мощностью реактора, математическая модель, экспериментальные исследования.

#### Computational and experimental investigations of the possibility to operate steam generation systems of nuclear propulsion plants when the primary pressurizer system integrity is lost

V.A. Vasilenko, A.L. Dmitriev, I.E. Batiagin, L.I. Spiridonova

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

#### **Abstract**

The paper reports results obtained from computations and experimental operation of a steam generation system in the nuclear propulsion prototype plant with a pressurized water reactor under conditions where the pressurizer system integrity is lost. The experimental and numerical simulation results demonstrate that the steam generation system remains operable when some or even all groups of high-pressure gas system (HPGS) cylinders are disconnected from the primary circuit. The experiment results can be used to support the possibility of continuing to operate steam generation systems of nuclear propulsion plants in case of pressurizer system non-integrity and, thus, expand the applicability conditions of these systems at nuclear propulsion prototype plants.

**Key words**: steam generation system, pressurized water reactor, high-pressure gas system, pressurizer, reactor power maneuvering, mathematical model, experimental investigations.

#### Введение

В настоящее время основной отечественной транспортной ЯЭУ является ЯЭУ водоводяного типа с водой под давлением [1–2]. В таких ЯЭУ создание и поддержание давления в первом контуре при температурных изменениях теплоносителя осуществляется за счёт «газовой подушки», создаваемой в компенсаторах объема (КО) с помощью системы газа высокого давления (ГВД) [3].

В ППУ ЯЭУ с реакторными установками (РУ) водо-водяного типа необходимый объем газа размещается в баллонах системы ГВД, подключенных к КО. Для повышения надежности системы ГВД баллоны объединены в группы. При нормальной эксплуатации ЯЭУ все группы баллонов ГВД подключены к первому контуру (рисунок). Это позволяет использовать ЯЭУ по прямому назначению во всех диапазонах мощностей с требуемыми маневренными характеристиками.

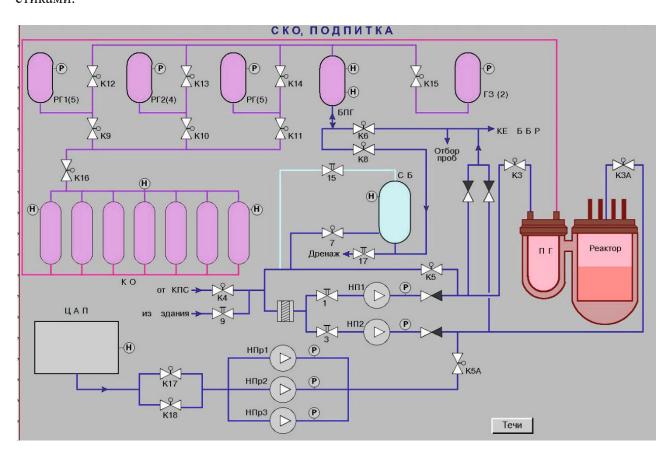


Рисунок. Мнемосхема «СКО, ПОДПИТКА» – видеокадр Комплекса моделирования динамики главной энергетической установки стенда-прототипа ЯЭУ

В соответствии с действующими руководящими документами исключается использование транспортных ЯЭУ при разгерметизации системы компенсации давления первого контура.

В процессе эксплуатации ЯЭУ возникновение газовой течи системы ГВД приводит к вводу стержней аварийной защиты (АЗ) в активную зону реактора, и, как следствие, к потере основных источников движения и электроснабжения корабля. При малой отключаемой течи восстановление работоспособности системы ГВД требует значительных временных затрат, а в случаях, связанных с большой потерей газа системы ГВД, приводит к невозможности использования ЯЭУ и аварийному выводу из действия объектов эксплуатации.

Следует отметить, что в случае возникновения отключаемой газовой течи первого контура у персонала имеется оперативный запас времени на идентификацию, принятие решения и выполнение мероприятий по предотвращению срабатывания АЗ ЯЭУ и локализации неисправности путем отключения неплотных групп баллонов от первого контура (вплоть до полного отключения системы ГВД от компенсаторов объема первого контура). Тем самым обеспечивается работа ЯЭУ без ввода стержней АЗ и сохраняется возможность успешного выполнения поставленных задач.

Для подтверждения возможности эксплуатации ЯЭУ при полной потере системы ГВД главным конструктором ППУ было принято решение о проведении расчетно-экспериментальных исследований и испытаний на наземном стенде-прототипе КВ-1 [4-5].

#### Расчётное обоснование безопасности работ

В ходе подготовки к испытаниям с целью обоснования безопасности проведения экспериментальных режимов при полной потере системы ГВД были выполнены расчеты параметров ЯЭУ при работе установки с отключенными ресиверными баллонами системы ГВД. Расчётный анализ выполнялся с использованием разработанного в ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» (НИТИ) комплекса моделирования динамики (КМД) стенда КВ-1.

КМД главной энергетической установки (ГЭУ) стенда КВ-1 представляет собой программно-аппаратный комплекс, состоящий из объединенных в локальную вычислительную сеть серверной ЭВМ и ПЭВМ, на которых функционирует программное обеспечение, включающее математическую и информационную модель ГЭУ и специальное системное программное обеспечение.

Комплексная математическая модель (КММ) в составе КМД ГЭУ стенда КВ-1 разработана на основе созданной в НИТИ технологии автоматизации моделирования ТЕРМИТ [6–7] является всережимной и верифицированной по результатам экспериментов и испытаний, проводимых на стенде КВ-1. КММ предназначена для взаимосвязанного расчета параметров ГЭУ в зависимости от вводимых управляющих воздействий и включает математические модели динамики физических процессов, протекающих в технических системах ГЭУ, а также математические модели систем управления. Для каждой технической системы во взаимосвязи моделируются все имеющиеся в ней функциональные элементы. КММ успешно используется для обучения операторов ЯЭУ, а также для предварительных расчетных оценок безопасности проводимых испытаний и отработки системы диагностирования.

КММ в составе КМД ГЭУ позволяет рассчитывать режимы с изменением агрегатного состояния водяного теплоносителя, это позволило использовать её для расчетов переходных режимов в первом контуре ГЭУ, в том числе провести расчет режимов работы установки с отключенными ресиверными баллонами системы ГВД.

В основу сценария расчетов были приняты положения принципиальной программы испытаний на стенде, разработанной АО «ОКБМ Африкантов». Расчетные исследования выполнены для следующих режимов:

- маневрирование мощностью ППУ при одной включенной группе баллонов системы ГВД;
- маневрирование мощностью ППУ при полном отключении всех групп ресиверных баллонов;
- экстренное снижение мощности ППУ при одной включенной группе и при полном отключении всех групп ресиверных баллонов;
- разогрев РУ с отключенными ресиверными баллонами.

Кроме того, проведены расчеты аварийных режимов:

- режим экстренного снижения мощности ППУ при зависании одной группы системы компенсации реактивности;
- разогрев РУ с отключенными ресиверными баллонами с последующим сбросом АЗ после достижения номинальной температуры первого контура и расхолаживание РУ без подпитки первого контура.

При проведении моделирования в качестве критериев, ограничивающих работу ГЭУ с отключенными ресиверными баллонами системы ГВД, выбраны:

- 1. Давление в первом контуре: при отсечении баллонов ГВД от баллонов КО уменьшается масса газа в системе компенсации объема и контур становится более «жестким». В результате давление в первом контуре относительно быстро достигает значения уставок безопасной эксплуатации.
- 2. Уровень теплоносителя в компенсаторах объема: при разогреве РУ с отключенными ресиверными баллонами системы ГВД производится дренирование теплоносителя первого контура (для поддержания давления). При последующем расхолаживании может возникнуть ситуация, когда вследствие снижения температуры и удельного объема теплоносителя в первом контуре весь теплоноситель из компенсаторов объема перетечет в первый контур, а затем в контур попадет газ, то есть при проведении испытаний недопустимо снижение уровня теплоносителя в КО до нулевой отметки.

#### Выполненные расчеты показали, что:

- 1. При предложенных в программе испытаний маневрах по мощности РУ давление в первом контуре не превышает значение уставки предупредительной сигнализации. При маневрах мощности вверх давление уменьшается не более, чем на 15 кгс/см², а при маневрах мощности вниз увеличивается не более, чем на 10 кгс/см²;
- 2. В режиме с остановкой двух турбогенераторов при отключении всех групп ГВД давление превышает значение уставки предупредительной сигнализации. При зависании одной из групп системы компенсации реактивности давление превышает уставку для сброса АЗ.
- 3. В режиме разогрева РУ при отключенных баллонах ГВД осуществляется дренирование КО в общем объеме более 25 % от номинального уровня. При последующем экстренном расхолаживании РУ без подпитки первого контура уровень в КО падает ниже 2 % при достижении температуры 125 °C и давления 92 кгс/см².

При проведении численного моделирования также установлено, что при действиях в соответствии с инструкцией по управлению ГЭУ режимы маневрирования мощностью и экстренному её снижению, предложенные в программе испытаний, не приводят к опасному повышению или понижению параметров первого контура, а в режиме разогрева, выполненном с дренированием при последующем экстренном расхолаживании без подпитки первого контура, уровень в КО уменьшается ниже допустимых значений.

На основании выполненного численного моделирования определены условия достижения неприемлемых значений уровня в КО при проведении испытаний в обоснование возможности эксплуатации ЯЭУ при полной потере системы ГВД.

#### Проведение испытаний на объекте

На основании полученных результатов численного моделирования были разработаны и согласованы с надзорными органами и главными конструкторами ППУ и стенда КВ-1 принципиальная (общая) и рабочие программы испытаний.

В ходе испытаний на стенде КВ-1 были выполнены следующие экспериментальные режимы по маневрированию мощностью реактора и экстренному её снижению при различном количестве подключенных к первому контуру групп баллонов ГВД:

- маневрирование мощностью при всех подключенных рабочих группах баллонов ГВД;
- маневрирование мощностью при подключенной только одной группе баллонов ГВД;
- экстренное снижение мощности при подключенной только одной группе баллонов ГВД;
- маневрирование мощностью при отключенных всех группах баллонов ГВД («жесткий» контур);
- экстренное снижение мощности при «жестком» контуре.

В ходе испытаний также был проведен ввод ЯЭУ в действие из холодного состояния при полностью отключенной системе ГВД (разогрев на «жестком» контуре).

В результате проведенных испытаний экспериментально подтверждена возможность использования ЯЭУ по прямому назначению (разогрев реактора, работа на мощности, маневрирование мощностью) при полностью или частично отключенной системе ГВД от компенсаторов объема первого контура.

Успешное проведение указанных экспериментальных режимов на стенде КВ-1 позволило проектанту ЯЭУ обосновать возможность работы ЯЭУ в случае возникновения аварийной ситуации, связанной с разгерметизацией газовых трубопроводов первого контура и полным отключением системы ГВД.

Сохранение работоспособности ЯЭУ на мощности в рассматриваемых ситуациях значительно расширяет границы использования технических средств при выполнении поставленных задач, в том числе и при возникновении аварийных ситуаций.

#### Заключение

Результаты, полученные в ходе расчётно-экспериментальных исследований, позволили:

- 1. Обосновать и подтвердить возможность эксплуатации паропроизводящей установки с различным количеством отключенных групп баллонов системы ГВД, вплоть до отключения всех групп баллонов ГВД от первого контура.
- 2. Получить экспериментальную информацию о предельных режимах маневрирования мощностью ЯЭУ в зависимости от числа отключенных групп баллонов ГВД.
- 3. Обосновать возможность работы транспортной ЯЭУ и всего объекта в целом в аварийных ситуациях, связанных с возникновением отключаемой газовой течи первого контура, для успешного завершения выполнения поставленных задач без сброса АЗ реактора.
- 4. Обосновать на основе численного моделирования и экспериментально подтвердить возможность ввода и использования ЯЭУ на «жестком» контуре при неработоспособной системе ГВД.

5. Внедрение полученных результатов позволит существенно повысить безопасность и эффективность эксплуатации транспортных ЯЭУ с реакторами водо-водяного типа.

#### **Conclusions**

- 1. Results of computational and experimental investigations were used to verify and confirm the operability of a steam generation system when some or even all groups of HPGS cylinders were disconnected from the primary circuit.
- 2. Experimental information about the limiting conditions for power maneuvering of nuclear propulsion reactor plants depending on the number of disconnected HPGS cylinder groups was obtained.
- 3. The possibility to continue operation of nuclear propulsion reactor plants and whole nuclear-powered ships under accident conditions with an isolable gas leak in the primary circuit and successively accomplish the missions without scram was demonstrated.
- 4. The possibility of starting up and operating nuclear propulsion reactor plants with inoperable HPGS was demonstrated using numerical simulations and experiments.
- 5. Practical application of the obtained results will help significantly improve safety and efficiency of operation of nuclear propulsion prototype plants with PWR-type reactors.

#### Литература

- 1. Машиностроение: энциклопедия: в 40 т., Т. IV-25: Машиностроение ядерной техники. Кн. 2 / ред. Е.О. Адамов. М.: Машиностроение, 2005. 944 с.
- 2. *Лейкин И.Ю*. Физические основы эксплуатации и безопасность корабельного ядерного реактора / И.Ю. Лейкин, Л.Б. Гусев. СПб.: Северная звезда, 2014. 468 с.
- 3. Особенности водно-химического режима I контура и проблемы эксплуатации оборудования реакторных установок атомных ледоколов / Д.С. Уртенов, Ю.Б. Воробьев, В.Е. Карнаухов, А.Л. Малышева, М.Е. Панина, М.Л. Лукашенко // Теплоэнергетика. 2020. № 8. С. 86–92.
- 4. *Бурсук В.И.* Перспективы продолжения испытаний ядерной энергетической установки на стенде-прототипе КВ-1 в 2017–2019 годах / В.И. Бурсук, В.А. Василенко, С.А. Петров // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок. 2017. № 4 (10). С. 9–17.
- 5. *Благовещенский А.Я.* Роль результатов испытаний ЯЭУ стенда КВ-1 в процессе приемки в состав ВМФ головного тяжелого атомного ракетного крейсера «Киров» // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок. 2019. № 2 (16). С. 101–106.
- 6. *Лялюев Д.В.* Система автоматизации разработки и сопровождения функционального и специального программного обеспечения тренажеров и анализаторов ЯЭУ ТЕРМИТ-Д / Д.В. Лялюев, А.А. Шаленинов // Вопросы атомной науки и техники: Сер. Физика ядерных реакторов. 1999. Вып. 2. С. 130–146.
- 7. Лялюев Д.В. Технология автоматизации моделирования ТЕРМИТ инструментальная графическая среда для разработки цифровых двойников, тренажерных и моделирующих комплексов ЯЭУ и энергоблоков АЭС // Атомная энергия. 2022. Т. 132, № 2. С. 93—99.

УДК: 621.039.536+621.039.578:629.5 DOI: 10.52069/2414-5726 2023 3 33 16

# Анализ опыта эксплуатации активных зон атомных ледоколов первого поколения. База данных в обоснование и развитие новых атомных ледоколов и плавучих энергоблоков

О.Б. Самойлов, А.И. Романов, В.Ю. Галицких, А.А. Захарычев, О.А. Морозов, А.В. Митрофанов, В.Ю. Силаев

АО «ОКБМ Африкантов», г. Нижний Новгород, Россия

#### Аннотация

В статье рассмотрены основные физико-технические характеристики, условия ядерной безопасности и данные по отработавшему топливу серийных ледокольных активных зон типа 14-10-3М, включая вопросы эксплуатации перспективных ледокольных активных зон типа 14-5/04УМ с увеличенным энергоресурсом.

Показано, что активные зоны действующих атомных ледоколов обладают высокими характеристиками безопасности, надежности, технико-экономической эффективности и радиационно-экологическими показателями, обеспечивающими базу развития новых атомных ледоколов и плавучих энергоблоков, что позволяет утверждать, что эти активные зоны являются значительным достижением российской атомной отрасли.

Одной из целей публикации статьи является демонстрация достижений АО «ОКБМ Африкантов» в области разработки активных зон реакторных установок атомных ледоколов и базы данных в обоснование и развитие новых атомных ледоколов и плавучих энергоблоков.

**Ключевые слова:** реакторные установки атомных ледоколов, канальная структура активной зоны, физическое и гидравлическое профилирование, характеристики безопасности, надежности и технико-экономической эффективности, радиационно-экологические показатели.

# Analysis of Operating Experience of First Generation Nuclear Icebreaker Cores. Database in Support of Development of New Nuclear Icebreakers and Floating Nuclear Power Units

O.B. Samoilov, A.I. Romanov, V.Yu. Galitskikh, A.A. Zakharychev, O.A. Morozov, A.V. Mitrofanov, V.Yu. Silaev

JSC Afrikantov OKBM, Nizhny Novgorod, Russia

#### **Abstract**

The article reviews basic physical and technical characteristics, nuclear safety conditions, and spent fuel data of commercial icebreaker reactor cores of 14-10-3M type. Some issues on operation of advanced icebreaker cores of 14-5/04UM type with increased power lifetime are considered.

It is shown that reactor cores of operating nuclear icebreakers have high safety, reliability, and performance characteristics and are radiation-safe for environment. It can be said that these reactor cores are a significant achievement of Russia's nuclear industry and their characteristics can be used as a basis for development of new nuclear icebreaker and floating nuclear power unit designs.

One of the purposes to publish this article is to advertise the company's achievements in designing reactor cores for nuclear icebreakers and creation of databases for development of new nuclear icebreakers and floating nuclear power units.

**Key words:** nuclear icebreaker reactor plants, duct-channel type core, core physical and hydraulic design; safety, reliability, and performance characteristics, radiation safety for environment.

#### Введение

Создание инновационных блочных атомных энергетических установок ОК-900 для атомного ледокола «Арктика» потребовало разработки напряжённой маневренной активной зоны с ключевой характеристикой 170 КВт/л в среднем по объёму. Имеющийся опыт и потенциал разработки топлива продиктовали ориентацию на твэл дисперсионного типа с высокообогащённым ураном (более 20 %).

Ледокольные активные зоны эксплуатируются в режиме саморегулирования и интенсивного маневрирования с высокой скоростью изменения мощности. Основной режим маневрирования с целью меньшей повреждаемости оборудования –  $0.1~\%~N_{_{\rm HOM}}/c$  без ограничения глубины и количества маневров.

Эволюционные разработки ледокольных активных зон обеспечили качественный скачок в повышении ресурсной надежности (нулевой отказ), улучшили экономику топливного цикла, позволили существенно понизить объем радиоактивных отходов и дозовые нагрузки на персонал при перезарядке реакторов [1].

В настоящее время активные зоны типа 14-10-3М обеспечивают эксплуатацию на завершающих этапах работы следующих атомных ледоколов (а/л):

- РУ-1 и РУ-2 а/л «Ямал» в 2022 году загружены две активные зоны;
- РУ а/л «Вайгач» активная зона загружена в 2023 году;
- РУ а/л «Таймыр» и «Севморпуть» загрузка активных зон ожидается в 2024-2025 гг.

Ниже рассмотрены основные физико-технические характеристики, условия ядерной безопасности активных зон типа 14-10-3М и данные по отработавшему топливу (ОЯТ).

Учитывая особенности выработки энергоресурса активной зоны, рассмотрены некоторые вопросы эксплуатации активной зоны 14-10-3М на лихтеровозе «Севморпуть».

В разделе 3 кратко рассмотрены основные характеристики перспективных активных зон типа 14-5/04УМ с увеличенным энергоресурсом.

#### Основные характеристики активных зон типа 14-10-3М

В серийных активных зонах типа 14-10-3М приняты следующие технические решения:

- одноразовая загрузка топлива для обеспечения максимального интервала работы между перегрузками;
- отказ от борного регулирования ввиду громоздкости требуемого для его реализации оборудования. Компенсация начального запаса реактивности на выгорание топлива осуществляется посредством выгорающих поглотителей на основе гомогенного бора, размещаемого в элементах конструкции ТВС, и сильноэкранированного гадолиния, размещаемого в стержнях выгорающего поглотителя (рис. 1, 2);
- использование двух независимых механических систем воздействия на реактивность, основанных на разных принципах действия: высокоэффективной системы компенсации реактивности и быстродействующей системы аварийной защиты;

- канальная структура активной зоны с размещением поглощающих стержней системы компенсации реактивности в межканальном пространстве;
- развитое физическое и гидравлическое профилирование.

На рис. 1 и 2 приведена структура ТВС основного исполнения активной зоны и ТВС под стержень аварийной защиты [2].

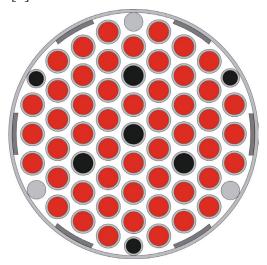


Рис. 1. Структура ТВС основного исполнения активной зоны типа 14-10-3М:

- твэлы:
- гадолиниевые СВП (стержни выгорающего поглотителя);
- цилиндрические вытеснители;
- боросодержащие пластины-вытеснители.

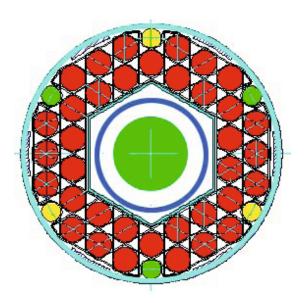


Рис. 2. ТВС под стержень аварийной защиты

С целью оптимизации всей совокупности характеристик активной зоны для а/л были предприняты опытные работы по использованию циркония в качестве оболочечного материала.

В качестве оболочечного материала в серийных активных зонах типа 14-10-3М использован циркониевый сплав Э110, широко применяемый в реакторах ВВЭР.

#### Ресурсные и физические характеристики

Активные зоны типа 14-10-3М обладают высокими технико-экономическими характеристиками и радиационно-экологическими показателями.

Основные ресурсные, физические и загрузочные характеристики серийной активной зоны типа 14–10–3М следующие [1]:

Энергоресурс, ТВт∙ч	2.2
Достигнутый ресурс, тыс. ч	41.6
Достигнутый срок службы, лет	9.4
Высота, мм	920
Эквивалентный диаметр, мм	1174
Число ТВС	241
Загрузка <sup>235</sup> U, кг	170.4
Среднее обогащение урана, %	51
Загрузка $\mathrm{Gd}_{\mathrm{ecr}}$ , кг	42.4
Загрузка $B_{ecr}$ , г	340
Отношение числа ядер водорода к ядрам $^{235}\mathrm{U}$ в рабочем стартовом состоянии	64
Средняя глубина выгорания <sup>235</sup> U, %	54

Интервал между перегрузками активных зон типа 14-10-3М для однореакторных установок («Вайгач» и «Таймыр») составляет 3.5–4 года при средней мощности 49–53  $%N_{_{\rm HOM}}$ ; для двухреакторных установок («Ямал» и «50 лет Победы») – ~5 лет при средней мощности 40–45  $%N_{_{\rm HOM}}$ . Время работы на мощности ~ 26000–29000 часов.

Имеет место тенденция некоторого увеличения времени работы и средней мощности реакторов в течение года. Для двухреакторных установок реализуется практика раздельных перегрузок реакторов.

Более 20 лет эксплуатации активных зон типа 14-10-3М (28 комплектов выработали энергоресурс) подтвердили высокую работоспособность (нулевой отказ) усовершенствованной ТВС и дисперсионных гладкостержневых твэлов с циркониевой оболочкой [2–5].

Активные зоны типа 14-10-3М обладают на сегодня непревзойденными показателями по удельной стоимости энергии в транспортной ядерной энергетике и являются эталоном при оценке альтернативных активных зон.

В контексте эксплуатации активных зон типа 14-10-3М целесообразно отметить эксплуатацию активной зоны 14-10-3М РУ лихтеровоза «Севморпуть».

Пониженная средняя мощность РУ лихтеровоза обусловила время работы на мощности активной зоны значительно выше проектного.

При энерговыработке 1.8−1.9 ТВт ч ресурс достиг 40 тыс. часов.

В то же время каботажные рейсы лихтеровоза в 2023 году потребуют использования проектного энергозапаса активной зоны 2.2 ТВт·ч. При этом ресурс достигнет значения 45–46 тыс. ч. Состояние по показателям радиохимических анализов позволяет ожидать достижения требуемых значений.

В результате развитого профилирования топлива и гадолиния размножающие свойства ячеек ТВС из разных областей активной зоны существенно различаются (рис. 3).

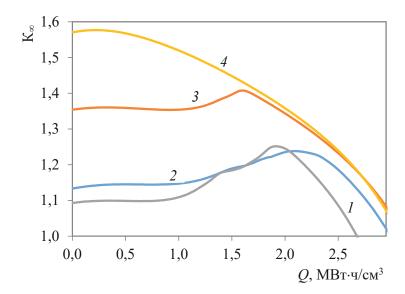


Рис. 3. Зависимость коэффициента размножения нейтронов ( $K\infty$ ) от выгорания топлива для характерных ячеек ТВС серийной активной зоны:

I — средняя область ТВС центральной зоны профилирования; 2 — основного массива; 3 — периферийной зоны; 4 — торцевые участки ТВС основного массива, соответственно

Размещение гадолиния в зоне выполнено по принципу снижения его плотности в активной зоне – загрузка и плотность снижаются в направлениях от центра к периферии активной зоны, соответственно, величина  $K_{\infty}$  заметно возрастает от центра к периферии активной зоны [1]. Данное решение позволило эффективно выровнять радиальное и высотное распределение энерговыделения, а также снизить недовыгорание нечетных изотопов гадолиния в конце кампании.

В соответствии с принятой схемой регулирования посредством рабочих органов центральной компенсирующей группы (РО ЦКГ) выгорание топлива в центральных ТВС ниже среднего. Максимум выгорания реализуется в ТВС основного массива. Сравнительно низкий для режима однократной загрузки коэффициент неравномерности выгорания топлива по объему активной зоны 1.4 свидетельствует о согласованности разработанного для активной зоны типа 14–10–3М физического профилирования со схемой регулирования посредством РО ЦКГ.

Выбором параметров СВП достигается сбалансированное выгорание топлива и поглотителя, так что оперативный запас реактивности достаточен для обеспечения маневренных режимов с учетом эффектов отравления  $^{135}$ Xe.

На рис. 4 [1] представлено соотношение долей запаса реактивности, обеспечиваемого загрузкой топлива активной зоны, компенсируемого выгорающими поглотителями (изотопами гадолиния и бора) и РО КГ в процессе выгорания.

Как видно на рис. 4, около 22 % начального запаса реактивности активной зоны компенсируется нечетными изотопами гадолиния,  $\sim$ 5 % – гомогенным бором, остальная часть  $\sim$ 3.5 %, приходящаяся на оперативный запас, – органами регулирования. В конце кампании потеря реактивности составляет около  $\sim$ 1.3 % из-за недовыгорания нечетных изотопов и поглощения нейтронов четными изотопами гадолиния. Кроме того, значительную долю ( $\sim$ 10 %) в суммарное снижение реактивности в конце кампании составляет утечка замедляющихся нейтронов.

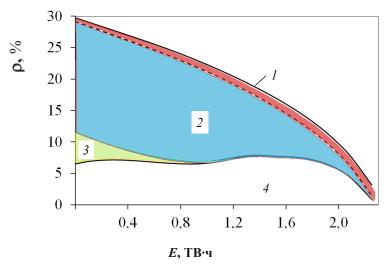


Рис. 4. Доля запаса реактивности, компенсируемая: четными изотопами гадолиния (1); нечетными изотопами гадолиния (2); бором (3); рабочими органами компенсирующих групп (4)

#### Вопросы обеспечения безопасности

В соответствии с требованиями НП-029-17 «Правила ядерной безопасности судов и других плавсредств с ядерными реакторами» в РУ атомных ледоколов предусмотрены две независимые электромеханические системы воздействия на реактивность, основанные на разных принципах действия: высокоэффективная система компенсации реактивности, состоящая из пяти рабочих органов компенсирующих групп (РО КГ), и быстродействующая система аварийной защиты, включающая 16 стержней аварийной защиты, объединенных в четыре группы рабочих органов аварийной защиты (РО АЗ).

Для обеспечения требуемой эффективности в РО КГ применены элементы (ПЭЛ) в виде стержней, заполненных сильнопоглощающими материалами.

ПЭЛ размещаются в межканальном пространстве, что обеспечивает их максимальную эффективность, и объединяются посредством плит в компенсирующие группы (рис. 5) [2]. Система компенсации реактивности включает 5 групп: ЦКГ, две СКГ и две ПКГ.

При работе на мощности запас реактивности, необходимый для обеспечения маневренных режимов с учетом возможной погрешности расчета, компенсируется РО КГ.

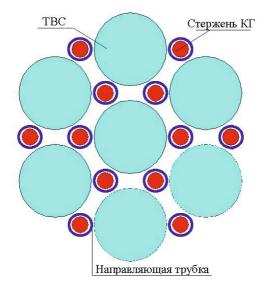


Рис. 5. Фрагмент расположения КГ в активной зоне

Оптимизированная схема физического профилирования активной зоны топливом и выгорающим поглотителем согласована со схемой компенсации реактивности при работе на мощности, для чего используется, в основном, рабочий орган центральной компенсирующей группы (РО ЦКГ). Это обеспечивает стабильность и минимальную неравномерность энерговыделения, а также минимизирует неравномерность распределения продуктов деления. Область РО ЦКГ охватывает 37 центральных ТВС (~15 % объема активной зоны).

Эффективность системы КГ активной зоны обеспечивает поддержание реактора в подкритическом состоянии в любой момент кампании с учетом возможного высвобождения реактивности, что подтверждается опытом эксплуатации ледокольных активных зон.

Минимальная величина подкритичности при зависании на верхнем концевом выключателе любой из КГ (ЦКГ, 1/2 СКГ или 1/2 ПКГ) за счёт погружения исправных КГ составляет не менее 1.0  $\beta$ эфф (при взведенных стержнях аварийной защиты).

Максимальная положительная реактивность, вводимая К $\Gamma$  при шаговом подъеме К $\Gamma$ , не превышает значений, требуемых Н $\Pi$ -029-17.

В модернизированных выемных блоках реакторов атомных ледоколов в поглощающих элементах РО КГ применяется диспрозий, который по условиям обеспечения начальной физической эффективности и сохранения её в процессе эксплуатации нескольких активных зон предпочтительнее европия. Применение диспрозия в качестве поглотителя РО КГ в реакторах атомных ледоколов имеет определенные преимущества и по радиационно-экологическим аспектам.

Быстродействующая система аварийной защиты включает 4 группы по 4 стержня (PO), перемещаемых в герметичных гильзах, расположенных в ТВС СУЗ (рис. 2).

В соответствии с требованиями НП-029-17 эффективность системы аварийной защиты активной зоны без учета группы стержней с максимальным физическим «весом» (трёх групп) обеспечивает необходимую скорость снижения мощности, а также поддержание реактора в подкритическом состоянии в процессе расхолаживания до погружения КГ, что подтверждается расчетным анализом и опытом эксплуатации ледокольных активных зон.

По результатам проводимых в процессе эксплуатации нейтронно-физических и теплотехнических испытаний контролируются изменения характеристик активных зон в ходе выгорания и их соответствия проектным значениям и требованиям нормативной документации.

#### Свойства самозащищенности активной зоны

Принятый способ компенсации запаса реактивности на выгорание без использования борной кислоты в сочетании с параметрами топливной решетки (объемные доли воды, топливной композиции и конструкционных материалов) и выбранный вид топлива (дисперсионное топливо на основе интерметаллида урана) обеспечивает отрицательные коэффициенты реактивности активной зоны по температуре топлива и теплоносителя, удельному объему теплоносителя, а также паровой и мощностной коэффициенты реактивности во всем диапазоне изменения соответствующих параметров, что определяет внутреннюю самозащищенность активной зоны.

В соответствии с требованиями НП-029-17 коэффициенты реактивности по температуре топлива и теплоносителя отрицательны во всем диапазоне изменения температуры активной зоны в течение всей кампании.

Характерные значения температурного эффекта реактивности для ледокольных активных зон 14-10-3M составляют от минус 5.0 % в начале кампании до минус 5.5 % в конце кампании.

Эффект Доплера при разогреве топлива от холодного состояния до рабочей температуры составляет на начало кампании минус 0.2% и изменяется в процессе кампании до минус 0.3%.

Паровой коэффициент реактивности, характеризующий изменение реактивности активной зоны при подкипании теплоносителя, отрицателен и составляет в процессе кампании от минус  $50\cdot10^{-5}$  до минус  $60\cdot10^{-5}$  на 1 % объемного паросодержания в ТВС.

Таким образом, свойства самозащищенности активной зоны обеспечивают выполнение требований НП-029-17.

Соответствие эффективности РО СУЗ и коэффициентов реактивности, обеспечивающих самозащищённость активных зон в составе РУ требованиям НТД по ЯБ, проверяются при сдаточных испытаниях активных зон и в процессе эксплуатации по результатам регулярных НФИ.

#### Изотопный состав выгружаемого топлива

Начальная загрузка 170.4 кг  $^{235}$ U в серийной ледокольной активной зоне 14-10-3М [1] позволяет достичь выгорания с делением 54 % от начальной загрузки, при этом расход  $^{235}$ U на единицу выработанной энергии (2.2 ТВт·ч) составляет 1.85 г/МВт·сут, расход природного урана  $\sim$  450 г/МВт·сут., что подтверждает хорошие физические характеристики активной зоны.

Средняя энерговыработка ТВС активной зоны за кампанию составляет 380 МВт сут/кгU. Около 2% энерговыработки обеспечивается за счёт делений на изотопах плутония, образующихся в процессе кампании из <sup>238</sup>U.

Отработавшее топливо активных зон обладает достаточно высоким потенциалом для дальнейшего использования. В выгружаемом топливе содержится 63.1 кг изотопов  $^{235}$ U при среднем обогащении урана 26~% и до нескольких килограммов изотопов плутония, образующегося в процессе кампании из  $^{238}$ U.

#### Увеличение энергоресурса. Активная зона типа 14-5/04УМ

Активные зоны с самодистанционирующимися твэлами получили «второе дыхание» при использовании сплава 42ХНМ в качестве оболочечного материала элементной базы.

С 2005 по 2011 год в РУ а/л «Вайгач» осуществлена эксплуатация модернизированной активной зоны на основе указанной элементной базы с увеличенным проектным энергоресурсом.

При этом удалось достичь энерговыработки без признаков разгерметизации, превышающей назначенный энергоресурс базовой активной зоны 14-10-3М.

Согласно выводам по результатам послереакторных исследований элементы ТВС после эксплуатации сохранили работоспособность и показали возможность дальнейшего повышения энергоресурсных показателей.

Учитывая экономическую значимость достигнутого результата, были изготовлены с некоторой физической оптимизацией четыре активные зоны типа 14-5/04УМ [2] с дополнительно увеличенным энергозапасом на 7%-8%, загруженные в РУ а/л «Вайгач», «Таймыр» и в РУ-1 и РУ-2 а/л «50 лет Победы».

Ожидается, что первая активная зона этой серии в РУ а/л «Вайгач» завершит эксплуатацию в 2023 году.

Реализация глубокого выгорания активных зон типа 14-5/04УМ в РУ а/л «Вайгач», «Таймыр» и в РУ-1 и РУ-2 а/л «50 лет Победы» была бы очень продуктивна в обоснование развития этого типа активных зон, в частности, с ориентацией на перспективу ледокола «Лидер».

Необходимо отметить, что при разработках топливного цикла активных зон типа 14-5/04УМ была решена сложная и весьма затратная задача, которая в настоящее время именуется как «технологический суверенитет». Имеется в виду замена «украинского сплава»

ЭП-630У на сплав 42ХНМ российского производства (AO «МСЗ»).

#### Заключение

Активные зоны действующих атомных ледоколов обладают высокими характеристиками безопасности, надежности, топливоиспользования и радиационно-экологическими характеристиками.

Создание и итоги эксплуатации серийной активной зоны 14-10-3M, демонстрирующие высокую надежность, радиационно-экологическую безопасность и технико-экономическую эффективность, позволяют утверждать, что эти активные зоны являются значительным достижением российской атомной отрасли.

#### **Conclusions**

The reactor cores of operating nuclear powered icebreakers have high safety, reliability, and fuel performance characteristics and radiation safety for the environment.

Creation and results of 14-10-3M series reactor core operation demonstrating high reliability, performance, and radiation safety for the environment allow us to say that these cores are a significant achievement of Russia's nuclear industry.

#### Литература

- 1. Концептуальные решения и нейтронно-физические характеристики активных зон атомных ледоколов / Е.А. Двойнишников, В.И. Макаров, А.Г. Промохов, О.Б. Самойлов, О.А. Морозов, В.И. Алексеев, В.Ю. Силаев // Атомная энергия. 2019. Т. 126, вып. 1. с. 19—26.
- 2. Опыт эксплуатации активных зон действующих атомных ледоколов // Д.Л. Зверев, О.Б. Самойлов, Д.Г. Преображенский [и др.] // Судостроение. 2017. № 4. С. 34.
- 3. Концепция разработки и результаты испытаний двухступенчатой активной зоны с каналами «дожигания» / О.Б. Самойлов, В.И. Алексеев, О.А. Морозов [и др.] // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок. 2018. Вып. (4)14. С. 9—19.
- 4. *Ватулин А.В.* Состояние и перспективы разработок дисперсионных твэлов для водо водяных реакторов различного назначения // ВНИИНМ 50 лет: сборник в 3 т., Т. 3. М., 1999. С. 90–99.
- 5. Опыт и перспективы разработки материалов и твэлов для транспортных реакторов и атомных станций малой мощности // Г.В. Кулаков, А.В. Ватулин, С.А. Ершов [и др.]. Атомная энергия. 2015. Т. 115, вып. 5. С. 243–249.

УДК 621.039.56

DOI: 10.52069/2414-5726 2023 3 33 25

# Апробация математической модели выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок с топливом дисперсионного типа

**Р.В.** Фоменков<sup>1</sup>, А.А. Ефимов<sup>1</sup>, Р.Э. Зинатуллин<sup>1, 2</sup>

<sup>1</sup> ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия <sup>2</sup> Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия

#### Аннотация

В работе приведены результаты экспериментальной проверки математической модели выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок с топливом дисперсионного типа, предназначенной для описания результатов внереакторной дефектации. Для апробации модели использовались результаты экспериментов, выполненных во ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» с отработавшими тепловыделяющими сборками (ОТВС) ядерных энергетических установок транспортного назначения на универсальном стенде внереакторной дефектации и с использованием специализированной системы контроля. Определение герметичности твэлов исследуемых ОТВС осуществляется методом газовой дефектации в сухой среде, в качестве реперного нуклида использовался <sup>85</sup>Kr.

В результате проведенных экспериментальных исследований выявлены основные факторы, значимо влияющие на скорость выхода  $^{85}{\rm Kr}$  из OTBC.

Результаты расчётов, выполненные с использованием математической модели выхода <sup>85</sup>Kr из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок с топливом дисперсионного типа, хорошо согласуются с полученными экспериментальными данными.

**Ключевые слова**: ядерные энергетические установки, радиоактивность, дефектация, криптон-85, тепловыделяющие сборки, математическая модель.

### Verification of a mathematical model describing release of long-lived gaseous fission products from leaking spent dispersion fuel assemblies

R.V. Fomenkov<sup>1</sup>, A.A. Efimov<sup>1</sup>, R.E. Zinatullin<sup>1, 2</sup>

<sup>1</sup> FSUE "Alexandrov NITI", Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia <sup>2</sup> Peter the Great Saint Petersburg Polytechnic University, Saint Petersburg, Russia

#### **Abstract**

The paper presents results of an experimental verification of a mathematical model that predicts release of long-lived gaseous fission products from leaking spent dispersion fuel assemblies. The model is intended to describe results of ex-core leak detection of spent fuel assemblies. It was verified against results of experiments carried out at FSUE "Alexandrov NITI". Spent nuclear fuel (SNF) assemblies from nuclear propulsion reactors were used in the experiments that were conducted in the ex-core leak detection setup provided with a purpose-designed instrumentation system. SNF assembly rods were tested for leaks using a dry method in a gas atmosphere. The <sup>85</sup>Kr was used as a reference radionuclide.

Based on the experimental study results, the main factors with significant influence on the rate of 85Kr release from SNF assemblies were determined.

Results of calculations performed with the mathematical model of <sup>85</sup>Kr release from leaking spent dispersion fuel assemblies agree well with experiment data.

**Key words**: nuclear propulsion reactor plants, radioactivity, leak detection, krypton-85, fuel assemblies, mathematical model

#### Введение

Обоснование надёжности при создании твэлов различного типа начинается с разработки прочностных расчётных моделей. Верификация данных моделей выполняется по результатам материаловедческих исследований отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС), облучённых на петлевых установках, или в составе активных зон (а.з.) полномасштабных стендов-прототипов [1, 2].

Проведение материаловедческих исследований связано с большими трудозатратами и высокой стоимостью работ. Поэтому из имеющегося массива облучённых сборок отбираются лишь несколько показательных ОТВС, в составе которых имеются негерметичные твэлы [3]. Образующиеся в процессе эксплуатации а.з. ядерных энергетических установок (ЯЭУ) транспортного назначения дефекты твэлов, как правило, представляют собой физические повреждения материала оболочек твэлов в виде трещин различного размера: от микродефектов (микротрещины, размеры которых исчисляются микронами) до крупных дефектов, допускающих непосредственный контакт топлива с теплоносителем (размеры трещин исчисляются десятками миллиметров). Отбор сборок для материаловедческих исследований осуществляется по результатам контроля герметичности оболочек (КГО) твэлов с применением различных методов.

Для стационарных ЯЭУ накоплен большой опыт КГО твэлов специальными системами контроля как на работающем реакторе, так и в процессе проведения планово-предупредительных ремонтов. После останова реактора применяются: контроль в пеналах штатной системы обнаружения дефектов сборок [4], диагностика ТВС при их перегрузке из реактора [5, 6] и в бассейнах выдержки отработавшего ядерного топлива [7, 8].

Для ЯЭУ транспортного назначения с целью поиска крупных дефектов твэлов с топливом дисперсионного типа используются методы оперативного КГО твэлов при выгрузке активных зон [9], а также внутриреакторной дефектации [8]. Для поиска меньших дефектов проводится внереакторная дефектация ОТВС «сухим» методом (методом газовой дефектации в сухой среде) с их нагревом на специальном стенде [10, 11] до температуры 150 °С и выше.

При дефектации ОТВС а.з. нового типа на стадии её практических испытаний (отработки) особое значение приобретает обеспечение достоверности получаемых экспериментальных результатов. Это, в свою очередь, требует повторения процедуры КГО твэлов для сборок, при дефектации которых была превышена фоновая активность по реперным нуклидам с целью отбраковки ложных результатов. Для сопоставления экспериментальных данных, полученных в процессе первичного и повторного нагрева ОТВС, была разработана математическая модель выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок с топливом дисперсионного типа [12].

Применимость указанной модели для анализа результатов дефектации ОТВС ЯЭУ транспортного назначения была проверена с привлечением экспериментальных данных, полученных во ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» в ходе специальных экспериментов с негерметичными сборками. Результаты апробации модели приведены ниже.

#### Описание экспериментальной части

В работе использовались результаты экспериментов с негерметичными ОТВС, полученные во  $\Phi$ ГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» с использованием следующих экспериментальных установок:

- универсальный стенд дефектации (УСД) ОТВС (стенд №1);
- специализированная система контроля (стенд №2).

#### Универсальный стенд дефектации

Стенд № 1 предназначен для выполнения внереакторной дефектации ОТВС «сухим» методом с нагревом ОТВС до температур в диапазоне от 60 до 300 °C [11]. Схема УСД приведена на рис. 1.

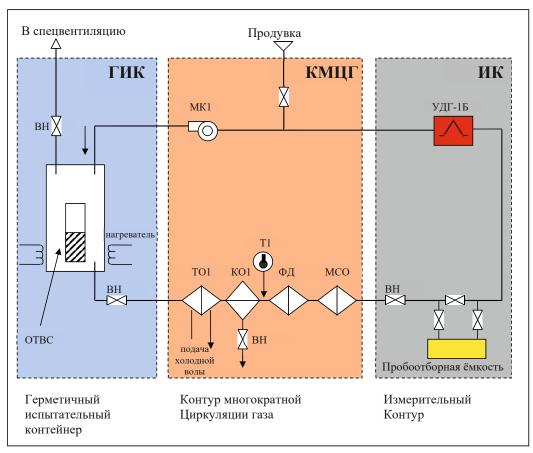


Рис. 1. Схема универсального стенда дефектации

Функционально УСД состоит из трёх основных частей: герметичного испытательного контейнера (ГИК) с электронагревателем, контура многократной циркуляции газа (КМЦГ) с запорной и соединительной аппаратурой и измерительного контура (ИК) с системой отбора газовых проб и комплексом измерительной аппаратуры, в состав которой входит, помимо прочего, устройство измерения объёмной активности радиоактивных газов УДГ-1Б. Для обеспечения циркуляции газа через стенд № 1 используется микрокомпрессор (газодувка МК1). Требуемая температура газа на входе в ИК (не более 40 °C) поддерживается за счёт работы теплообменника (ТО1). Температура на входе в ИК контролируется с использованием термопары (Т1).

Для очистки газа от различных примесей и влаги используются: каплеотбойник (КО1), аэрозольные фильтры (ФД) и модернизированная система очистки (МСО).

#### Экспериментальный стенд № 2

Для выполнения серии измерений с негерметичной ОТВС при различном давлении использовалась специализированная система (стенд № 2). Принципиальная схема стенда № 2 приведена на рис. 2.

Отметим, что в составе экспериментального стенда № 2 использовались ГИК и радиометрическая установка измерения объемной активности газа по бета-излучению (УДГ-1Б, позиция 5 на рис. 2) из состава стенда № 1.

При подготовке к проведению экспериментов Газовый (воздушный) измерительный контур стенда № 2 был модернизирован для снижения его суммарного объёма по сравнению со стендом № 1. Для обеспечения циркуляции газа через стенд № 2 использовался микронагнетатель (газодувка, позиция 6 на рис. 2).

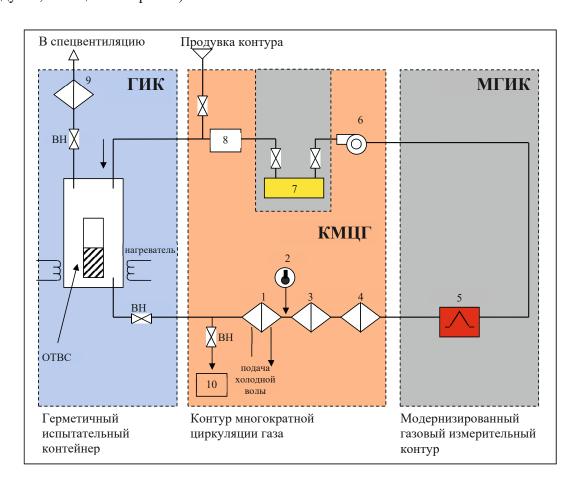


Рис. 2. Принципиальная схема экспериментального стенда №2:

- 1 охладитель; 2 устройство измерения температуры газа;
- 3 фильтродержатель с фильтром РСП-20; 4 аэрозольный фильтр;
  - 5 устройство измерения объёмной активности газов УДГ-1Б;
- 6 газодувка; 7 съёмная измерительная ёмкость; 8 ротаметр;
  - 9 аэрозольный фильтр; 10 аэрозольный фильтр

С помощью клапанов, указанных на рис. 2, и дополнительного оборудования, которое не отражено на рисунке, выполнялись следующие операции:

 измерения объёмной активности газа с циркуляцией воздуха от газодувки по всему контуру (измерительный контур и воздушный объем ГИК);

- измерения при отсутствии циркуляции воздуха по контуру;
- измерения только при циркуляции или отсутствии циркуляции воздуха в измерительном контуре;
- продувка сжатым воздухом ГИК или продувка под разрежением;
- продувка только измерительного контура или всего контура с помощью газодувки;
- повышение давления в ГИК до 6 кгс/см<sup>2</sup>;
- понижение давления в ГИК до 0.01 кгс/см².

#### Измерения объёмной активности 85 Kr

Измерение объёмной активности <sup>85</sup>Kr, поступающего из негерметичных ОТВС в объём ИК (стенд № 1) или газового измерительного контура (стенд № 2), выполнялось следующим образом.

С определённой периодичностью проводилось перемешивание газа по контуру за счёт включения газодувки (расход составлял порядка 20 дм³/мин для стенда № 1 и 16 дм³/мин — для стенда № 2). После завершения переходных процессов в контуре, вызванных работой газодувки, выполнялась процедура измерения объёмной активности газа. Время работы газодувки, периодичность её включения, а также длительность процедуры измерений могли варьироваться в разных экспериментах, однако в рамках одного эксперимента оставались неизменными.

Устройство УДГ-1Б обеспечивало проведение измерений объёмной активности газа в ИК по бета излучению на протяжении всего эксперимента в непрерывном режиме. Экспозиция измерений составляла 10 с. При реализации периодической процедуры измерений объёмной активности газа, длительность которой могла варьироваться от 5 до 30 минут (в зависимости от регламента) с использованием УДГ-1Б выполнялось от 30 до 180 определений активности соответственно. Расчёт усреднённой объёмной активности газа в контуре за время одной процедуры измерений выполнялся в соответствии с рекомендациями [13]. Значение усреднённой активности  $a_i$  приписывалось времени начала процедуры измерений  $t_i$ .

### Алгоритм обработки экспериментальных данных и выполнения прогнозных расчётов

Прогнозные оценки изменения объёмной активности нуклида в контуре после достижения стационарной температуры нагрева выполнялись по формуле, вытекающей из математической модели [12]:

 $a_{exp} = G \cdot \left( \sqrt{\xi + \tau} - \sqrt{\xi} \right) + a_f, \, \mathbf{b}_{\mathbf{K}} \tag{1}$ 

где

- $a_{_{\!\it exp}}$  расчётное значение объёмной активности  $^{85}{
  m Kr}$  в контуре стенда дефектации при постоянной температуре ОТВС, Бк;
- $a_f$  объёмная активность  $^{85}{\rm Kr}$  в контуре на момент достижения стационарной температуры ОТВС, Бк/м<sup>3</sup>
- G эффективный коэффициент пропорциональности, Бк/( $q^{1/2} \cdot M^3$ );
- $\xi$  «эффективное» время до достижения стационарного режима дефектации, ч;
- т время дефектации при постоянной температуре ОТВС, ч.

Расчёт параметров модели (1), таких как G,  $\xi$  и  $\tau$ , выполнялся в соответствии с алгоритмами, представленными в работе [14]. Значение параметра  $a_f$  определялось, исходя из условий эксперимента.

Расчёт скорости выхода  $^{85}$ Kr ( $v_i$ , Бк/(ч·м³)) из ОТВС выполнялся на основании данных по объёмной активности газа в контуре стенда в моменты времени  $t_i$  и  $t_{i+1}$  с использованием выражения:

$$\upsilon_{i} = \frac{a_{i+1} - a_{i}}{t_{i+1} - t_{i}},\tag{2}$$

гле

 $a_i$  и  $a_{i+1}$  — усреднённые значения объёмных активностей  $^{85}{\rm Kr}$  в контуре стенда дефектации, определённые в процессе выполнения измерений в моменты времени  $t_i$  и  $t_{i+1}$ , соответственно,  ${\rm Fk/m^3}$ ;

 $t_i$  и  $t_{i+1}$  — время выполнения i-го и i+1-го измерения объёмной активности  $^{85}{\rm Kr}$  в контуре стенда дефектации с момента начала работ, ч.

Погрешность определения скорости выхода  $^{85}{\rm Kr}~(\Delta v_{_{\it f}},\, {\rm Fk/}({\rm u}\cdot{\rm m}^3))$  рассчитывалась по формуле:

$$\Delta v_{i} = \sqrt{\frac{(\Delta a_{i+1})^{2} + (\Delta a_{i})^{2}}{(t_{i+1} - t_{i})^{2}} + 2 \cdot \left(\frac{a_{i+1} - a_{i}}{(t_{i+1} - t_{i})^{2}} \cdot \Delta t\right)^{2}}, \, \text{KK/}(\mathbf{y} \cdot \mathbf{M}^{3})$$
(3)

где

 $\Delta a_{i+1}$ ,  $\Delta a_i$  — погрешности определения активности <sup>85</sup>Kr в i+1-й и i-й контрольных точках соответственно, Бк/м<sup>3</sup>;

 $\Delta t$  — погрешность определения времени t, ч.

### Влияние давления газа в герметичном испытательном контейнере на скорость выхода $^{85}{ m Kr}$

Отметим, что стимулирование ускоренного выхода газообразных продуктов деления из внутренних полостей твэлов на атомных станциях с реакторами типа ВВЭР выполняется с использованием методов изменения внешнего давления [4, 5, 10]. Структура дисперсионного топлива, в свою очередь, исключает наличие открытых полостей под оболочкой. Тем не менее, при нарушении данной структуры, включая отслоение топлива от оболочки в процессе облучения, наличие открытых полостей с накопившимися в них газообразными продуктами, могло привести к искажению математической модели диффузионного выхода ГПД из облучённого топлива [12]. По этой причине было проверено влияние изменения давления в ГИК на скорость выхода продуктов деления из топлива.

Эксперимент выполнялся на стенде № 2 и включал в себя четыре этапа. На каждом этапе определялась скорость выхода  $^{85}$ Kr из негерметичной ОТВС. На первых двух этапах давление в ГИК не менялось и составляло  $1\cdot10^5$  Па («Нормальное давление»). На третьем этапе перед началом измерений выполнялась продувка ГИК при циклическом изменении давления с  $1\cdot10^5$  до  $6\cdot10^5$  Па (10 циклов – «Повышение давления»), а на четвёртом этапе — циклическое снижение давления с  $1\cdot10^5$  до  $0.04\cdot10^5$  Па (3 цикла) и с  $1\cdot10^5$  до  $0.01\cdot10^5$  Па (2 цикла) («Снижение давления»). Давление менялось за счёт разных режимов работы газодувки.

При подготовке эксперимента ожидалось, что скорость выхода <sup>85</sup>Kr при «Нормальном давлении» меняться не будет. В случае, если циклическое изменение внешнего давления

окажет стимулирующее влияние на выход  $^{85}$ Kr, то на третьем или четвёртом этапах скорость  $\upsilon_{i}$  будет выше, чем на первых двух. Если нет стимулирования, то скорость выхода продуктов деления на этих четырех этапах будет приблизительно одинаковой (см. рис. 3).

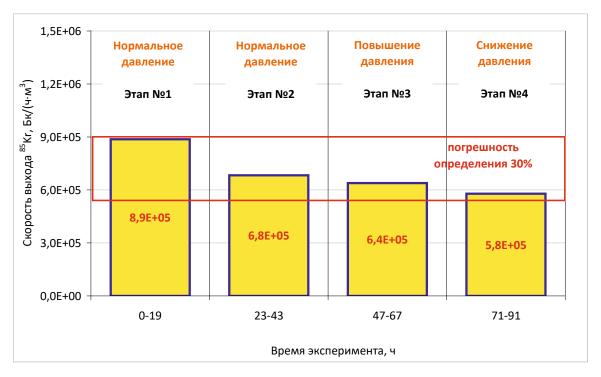


Рис. 3. Скорость выхода <sup>85</sup>Kr из негерметичной ОТВС в ходе экспериментов с изменением давления

Из представленных на рис. З данных следует, что скорость выхода <sup>85</sup>Kr на всех четырех этапах находилась (в пределах погрешности определения) на одном уровне. Таким образом, можно сделать вывод о неэффективности изменений внешнего давления в ГИК для стимулирования выхода <sup>85</sup>Kr из дисперсионного топлива: этапы «Повышение давления» и «Снижение давления» (обозначения столбцов на рис. З) не приводят к заметному изменению скорости  $\upsilon_i$  по сравнению с этапами «Нормальное давление». Тем самым, полученные результаты позволяют говорить об отсутствии существенных нарушений структуры топливной композиции после облучения и отсутствии значительного влияния аэродинамических возмущений на площадь открытой поверхности топлива. Следовательно, искажений диффузионной модели выхода <sup>85</sup>Kr из дефектов твэлов, заложенной в модель [12], в ходе экспериментов не обнаружено.

#### Влияние температуры на скорость выхода <sup>85</sup>Kr

В связи с температурным ростом коэффициента диффузии (закон Аррениуса), который входит в параметр G модели (1), ожидалось, что увеличение температуры при дефектации негерметичных ОТВС должно приводить к росту скорости выхода  $^{85}$ Kr. Для проверки данного ожидания были рассмотрены результаты экспериментов, поставленных с негерметичными ОТВС на стенде N 1 при атмосферном давлении и нагреве ГИК в диапазоне температур от 20 °C до 300 °C по различным регламентам. Типичные результаты выполненных экспериментов приведены на рис. 4 (нагрев до 300 °C) и рис. 5 (нагрев до 200 °C).

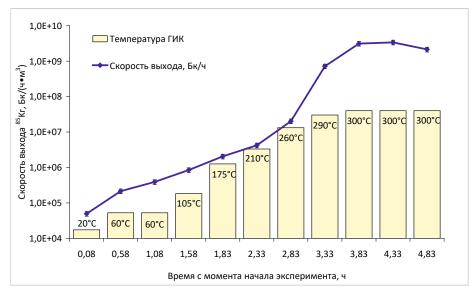


Рис. 4. Изменение скорости выхода активности в экспериментах при поэтапном нагреве ГИК:  $60 \rightarrow 300~^{\circ}\mathrm{C}$ 

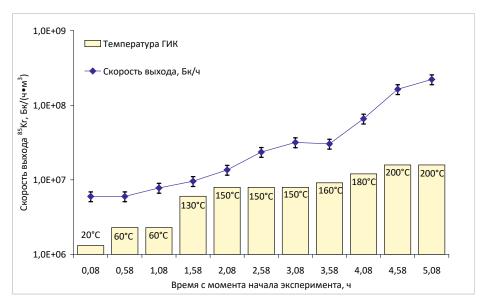


Рис. 5. Изменение скорости выхода активности в экспериментах при поэтапном нагреве ГИК:  $60 \to 200~^{\circ}\mathrm{C}$ 

Полученные данные (см. рис. 4–5) свидетельствуют, что повышение температуры нагрева ОТВС, как и ожидалось, приводит к росту скорости выхода  $^{85}$ Kr из дефектов. При этом получено, что рост температуры нагрева ГИК с 60 °C до 200 °C повышает скорость выхода в 30 раз, а с 60 °C до 300 °C – на четыре порядка.

#### Влияние времени дефектации на скорость выхода <sup>85</sup>Kr

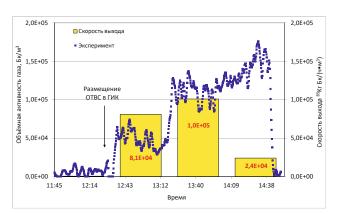
Отметим, что согласно математической модели (1) при постоянной температуре ОТВС (G = const) с течением времени ( $\tau_b$  увеличивается) должно наблюдаться снижение скорости выхода <sup>85</sup>Kr из топлива [12]:

$$\upsilon(\tau_a, \tau_b) = \frac{G}{\sqrt{\xi + \tau_a} + \sqrt{\xi + \tau_b}}, \, \text{Bk/}(\text{Y} \cdot \text{M}^3).$$
 (4)

Снижение скорости выхода <sup>85</sup>Kr логично связать с эффектом «обеднения» со временем поверхностных слоёв топлива по криптону. На рис. 4 данный эффект заметен, однако более явно он прослеживается при рассмотрении специальных экспериментов, описанных ниже.

#### Эксперименты при нагреве ОТВС до 200 °С

В ходе специальных экспериментов, поставленных на стенде № 1, негерметичные сборки размещались в ГИК, уже нагретый до 200 °С. Измерение объёмной активности <sup>85</sup>Кг в ИК выполнялось с периодичностью раз в 45 минут, включая 5 минут измерений активности в ИК и 15 минут перемешивания газа по УСД. Эксперименты проводились при атмосферном давлении газа (воздуха) в контуре УСД. Длительность наблюдения составляла 2–3 часа. Экспериментальные результаты с негерметичными ОТВС № 1 и № 2, приведены на рис. 6–7, соответственно.



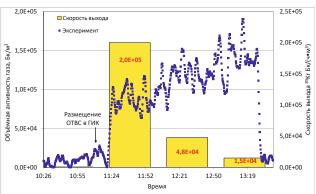


Рис. 6. Изменение активности газа при дефектации ОТВС N 1 и изменение скорости выхода  $^{85}$ Kr

Рис. 7. Изменение активности газа при дефектации ОТВС № 2 и изменение скорости выхода <sup>85</sup>Kr

Если сопоставить представленное на рис. 6, 7 изменение объемной активности  $^{85}$ Kr в контуре (изменение объемной активности газа в контуре), то визуально наличие определённых закономерностей выхода  $^{85}$ Kr из дефектов заметить достаточно трудно. По этой причине дополнительно на рис. 6−7 приведены данные по скоростям выхода  $^{85}$ Kr в измерительный контур. Это позволяет увидеть, что скорости выхода  $^{85}$ Kr значительно снижаются с течением времени как для ОТВС № 1 (более чем в 4 раза), так и для ОТВС № 2 (более чем в 10 раз).

Также стоит отметить, что представленное на рис. 6–7 изменение скорости выхода <sup>85</sup>Кг происходит не по одному и тому же сценарию: для ОТВС № 1 скорость сначала нарастает и лишь затем падает, а для ОТВС № 2 – скорость сразу достигает максимального значения. Эти различия связаны, прежде всего, с невозможностью проведения экспериментов при одинаковых условиях и обусловлены трудоёмкостью выполняемых технологических операций с облучёнными сборками. Тем самым, полученные данные подтверждают необходимость использования математических моделей для интерпретации результатов дефектации.

#### Эксперименты при комнатной температуре

Помимо первых четырёх этапов эксперимента на стенде № 2, рассмотренных ранее (см. рис. 3), через три для после завершения этапа № 4 был проведён пятый этап (164–187 часов после начала эксперимента). Полный массив данных, полученных на стенде № 2, представлен на рис. 8. Как и на рис. 3, на рис. 8 приведены данные по скорости выхода <sup>85</sup>Kr из негерметичных твэлов для рассматриваемой ОТВС.

Приведённые на рис. 8 данные свидетельствуют о наличии явного тренда на снижение

скорости выхода  $^{85}$ Kr с течением времени при температуре (20 °C) – за семь дней скорость выхода  $^{85}$ Kr снизилась в 2.8 раза от первоначального значения.

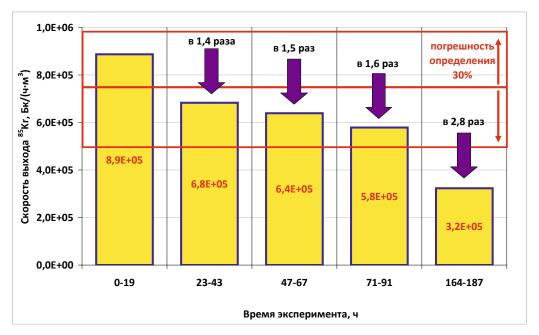


Рис. 8. Скорость выхода <sup>85</sup>Kr из негерметичной ОТВС в ходе длительного эксперимента при температуре 20 °C

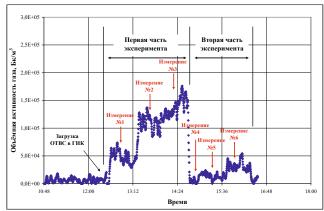
Таким образом, представленные выше результаты экспериментов подтверждают снижение скорости выхода  $^{85}$ Kr как при температуре ГИК равной 200 °C, так и при температуре 20 °C: скорость снижается в 4–10 раз всего за несколько часов при нагреве до 200 °C, а при температуре 20 °C – почти в 3 раза за семь дней наблюдений. Следовательно, эффект обеднения поверхностных слоёв топлива по криптону оказывает существенное влияет на результаты дефектации ОТВС с дисперсионным топливом и должен учитываться при интерпретации результатов.

#### Сопоставление экспериментальных данных с расчётом

Отдельный интерес представляла возможность предсказания экспериментальных данных на основе модели (1). Для этой цели были рассмотрены результаты, полученные в ходе дополнительных экспериментов на стенде № 1 с ОТВС № 1 и ОТВС № 2, которые были проведены вслед за рассмотренными выше (см. рис. 6 и 7 соответственно).

Вторая часть эксперимента с ОТВС № 1 (ОТВС № 2) следовала сразу за первой. Температура нагрева не снижалась, ОТВС не извлекалась из УСД. Выполнялась продувка газового контура для удаления накопленного в нём радиоактивного <sup>85</sup>Кг. После завершения продувки выполнялось наблюдение за изменением объёмной активности <sup>85</sup>Кг в контуре по стандартному регламенту (периодичность измерений – раз в 45 минут; перемешивание газа по контуру перед измерениями – 15 минут; время, за которое происходит усреднение показаний УДГ-1Б, – 5 минут).

Изменения объёмной активности в ходе первой и второй частей экспериментов с ОТВС № 1 и ОТВС № 2 видны на рис. 9 и 10. Дополнительно на рисунках отмечены этапы эксперимента, время размещения ОТВС в ГИК и время выполнения процедур измерения объёмной активности  $^{85}$ Kr (измерения № 1-№ 6).



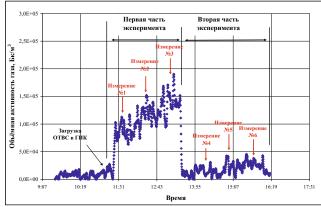
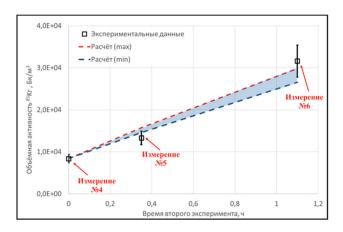


Рис. 9. Изменение объёмной активности газа в ИК при дефектации ОТВС № 1

Рис. 10. Изменение объёмной активности газа в ИК при дефектации ОТВС № 2

По результатам первой части экспериментов определялись параметры математической модели (1). Значение параметра  $a_f$  для второй части эксперимента определялось по результатам измерений объёмной активности газа в контуре УСД после его продувки. На основании известных параметров модели был выполнен прогнозный расчёт объёмной активности  $^{85}$ Kr в ИК стенда N 1 для второй части эксперимента.

На рис. 11 и 12 приведено сопоставление усреднённых экспериментальных данных и результатов расчётов с учётом погрешности их определения.



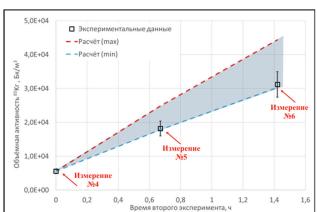


Рис. 11. Сопоставление экспериментальных и расчётных данных в ходе второй части эксперимента с ОТВС № 1

Рис. 12. Сопоставление экспериментальных и расчётных данных в ходе второй части эксперимента с ОТВС № 2

Результаты, представленные на рис. 11, 12, свидетельствуют о близких значениях результатов прогнозных расчётов и результатов эксперимента с учётом ошибки методов. Это позволяет сделать вывод о правильности заложенных в математическую модель [12] теоретических зависимостей для описания выхода <sup>85</sup>Kr в процессе многократной дефектации ОТВС.

#### Заключение

1. Установлено, что циклические изменения давления воздуха в ГИК не оказывают заметного влияния на скорость выхода <sup>85</sup>Kr из негерметичных ОТВС ЯЭУ транспортного назначения. Это свидетельствует об отсутствии нарушения структуры дисперсионного топлива в период эксплуатации сборки (как до разгерметизации, так и после неё), которое могло привести к искажению диффузионного механизма выхода <sup>85</sup>Kr из дефектов.

- 2. Исходя из диффузионной модели, повышение температуры нагрева ОТВС должно способствовать росту скорости выхода  $^{85}$ Kr из негерметичных ОТВС. Анализ экспериментов показал, что повышение температуры нагрева ГИК с 60 до 200 °C приводит к увеличению скорости выхода в 30 раз, а с 60 до 300 °C на четыре порядка.
- 3. Получено, что эффект обеднения поверхностных слоёв топлива оказывает существенное влияет на результаты дефектации ОТВС с дисперсионным топливом: при выдержке ОТВС в ГИК, нагретом до температуры 200 °C, происходит снижение скорости выхода <sup>85</sup>Кг из негерметичных ОТВС более чем в 4 раза за несколько часов наблюдений. В то же время при температуре 20 °C снижение скорости выхода <sup>85</sup>Кг в 3 раза происходит лишь за сотни часов наблюдения.
- 4. Прогнозные расчёты, выполненные с использованием математической модели выхода <sup>85</sup>Kr из облучённого топлива дисперсионного типа, согласуются с результатами экспериментов. Это позволяет рекомендовать данную модель для сопоставления экспериментальных результатов, полученных при неоднократном повторении дефектации ОТВС.

#### **Conclusions**

- 1. Cyclic changes of air pressure in the sealed test container have no marked influence on the rate of <sup>85</sup>Kr release from leaking spent dispersion fuel assemblies of nuclear propulsion reactor plants. This observation indicates the absence of dispersion fuel structure deformation during fuel assembly operation (both before and after leak), which could lead to distortion of the diffusion mechanism of <sup>85</sup>Kr release from defects.
- 2. According to the diffusion model, an increase in the heating temperature of SNF assemblies should promote an increase in the rate of <sup>85</sup>Kr release from leaking SNF assemblies. An analysis of the experiments has shown that an increase in the temperature of the sealed test container heating from 60 °C to 200 °C leads to 30 times increase in the release rate and from 60 °C to 300 °C four orders of magnitude increase.
- 3. Depletion in the surface fuel layers has a significant effect on results of leak detection in spent dispersion fuel assemblies: the rate of <sup>85</sup>Kr release from SNF assemblies decreases more than 4 times after several hours of residence in the sealed test container heated to 200 °C, while 3 times decrease in <sup>85</sup>Kr release rate is observed only after hundreds of hours in the container heated to 20 °C.
- 4. Predictions obtained with the mathematical model of <sup>85</sup>Kr release from spent dispersion fuel agree with experiment results. Therefore, this model can be recommended for comparing among experiment results obtained from repeated leak tests of SNF assemblies.

#### Литература

- 1. *Василенко В.А.* Концепция и технология комплексных испытаний судовых ядерных энергетических установок на наземных стендах-прототипах. СПб.: Изд.-во «Моринтех», 2003. 168 с.
- 2. Методические особенности моделирования работоспособности тепловыделяющих элементов / Г.В. Кулаков, Ю.В. Коновалов, А.А. Косауров, А.В. Ватулин // Инженерный журнал: наука и инновации. 2015, вып. 6. URL: http://engjournal.ru/catalog/pmce/nre/1408.html
- 3. *Перепелкин С.О.* Изучение состояния и возможности извлечения негерметичных твэлов из ремонтопригодных ТВС ВВЭР-1000: автореферат дисс. ... канд. техн. наук. Димитровград, 2010. 24 стр.

- 4. РД ЭО 1.1.2.10.0521-2009. Типовая методика контроля герметичности оболочек тепловыделяющих элементов. Сборки тепловыделяющих ядерных реакторов ВВЭР-1000. М.: Концерн «Росэнергоатом», 2009.
- 5. *Славягин П.Д.* Совершенствование контроля герметичности твэлов при эксплуатации энергоблоков АЭС С ВВЭР-1000 / П.Д. Славягин, В.А. Хрусталев // Энергетика и электротехника. Вестник СГТУ. − 2004. − № 4 (5). − С. 86−91.
- 6. RU 2186429 C2 G21 C 17/07, 19/10. Способ перегрузки и контроля герметичности тепловыделяющей сборки реактора с жидким теплоносителем и устройство для его осуществления.
- 7. Патент РФ № 2147148 G21C17/00, G01M3/00. Способ контроля герметичности оболочек твэлов при переводе на сухое хранение. Исследование устройств на герметичность. Опубл. 27.03.2000.
- 8. Патент № 2297680, Российская Федерация G21C 17/07. Способ контроля герметичности оболочек твэлов и устройство для его осуществления / А.С. Курский, В.М. Ещеркин, А.М. Краснов, А.В. Ещерки. Опубл. 20.04.2017. Бюл. № 11.
- 9. Метод оперативного контроля герметичности оболочек твэлов при выгрузке ледокольной активной зоны / М.М. Кашка, А.Н. Пастухов, О.Б. Самойлов, Б.И. Коломиец, С.П. Довбуш. Атомная энергия. 2016. Т. 121, вып. 5. С. 290–293.
- 10. Обоснование методики контроля герметичности оболочек твэлов с матричной структурой топлива при перегрузках реактора / М.Л. Жемжуров, В.А. Левадный, С.Б. Нестеренко, И.Я. Поплыко. Известия АН БССР. Сер. физ.-энерг. Наук. 1987. № 4. 7–10.
- 11. Внереакторный контроль герметичности оболочек твэлов ОТВС ТЯЭУ. Восьмая научно-техническая конференция // В.Г. Ильин, В.Н. Епимахов, В.В. Четвериков, О.Н. Саранча, Р.В. Фоменков // Проблемы и перспективы развития химического и радиохимического контроля в атомной энергетике (Атомэнергоаналитика-2017). 30 мая—01 июня 2017 года, г. Сосновый Бор Ленинградской области: материалы конференции / ред. Ю.В. Цапко СПб.: Изд-во ВВМ, 2017. С. 391—394.
- 12. *Фоменков Р.В.* Математическая модель выхода долгоживущих ГПД из негерметичных ОТВС с топливом дисперсионного типа / Р.В. Фоменков, А.В. Ельшин, Р.Э. Зинатуллин // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок. − 2023. − № 1 (31). − С. 16−30.
- 13. *Новицкий П.В.* Оценка погрешностей результатов измерений / П.В. Новицкий, И.В. Зограф. Л.: Энергоатомиздат, 1991. 304 с.
- 14. Фоменков Р.В. Методика дефектации ОТВС с микродефектами оболочек твэлов и результаты её апробации по результатам экспериментов / Р.В. Фоменков, Р.Э. Зинатуллин // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок. 2023.  $\mathbb{N}$  2 (32). С. 41–63.

УДК 681.518.3

DOI: 10.52069/2414-5726\_2023\_3\_33\_38

# Разработка программного обеспечения для обработки показаний датчиков прямого заряда системы внутриреакторного контроля в переходных режимах

А.М. Панкин<sup>1</sup>, В.С. Костарев<sup>2</sup>, А.А. Калютик<sup>2</sup>, Р.Ю. Легких<sup>3</sup>

<sup>1</sup>ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия <sup>2</sup>Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия <sup>3</sup>Филиал АО «Концерн Росэнергоатом» Ленинградская атомная станция, г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия

# Аннотация

Представлены программные средства для обработки показаний датчиков прямого заряда (ДПЗ), которые входят в систему внутриреакторного контроля ядерного реактора. В качестве объектов контроля в работе рассматривается и сам датчик, и тепловыделяющие элементы активной зоны реактора.

Обработку показаний ДПЗ предлагается проводить как для статических, так и для переходных режимов работы активной зоны. В этом случае в переходных режимах с использованием программных средств обработки показаний ДПЗ могут определяться коэффициенты динамики нейтронного потока, вычисляемые по токовым величинам ДПЗ системы внутриреакторного контроля по аналогии с определением величин реактивности по выходным сигналам ионизационных камер системы управления и защиты ядерного реактора.

**Ключевые слова**: датчик, контроль, ядерный реактор, нейтронный поток, тепловыделяющий элемент.

# Development of software intended to interpret readings from self-powered neutron detectors of in-core instrumentation system for transient conditions

A.M. Pankin<sup>1</sup>, V.S. Kostarev<sup>2</sup>, A.A. Kalyutik<sup>2</sup>, R.Yu. Legkih<sup>3</sup>

<sup>1</sup>FSUE "Alexandrov NITI", Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia <sup>2</sup>Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, Saint Petersburg, Russia <sup>3</sup>The Leningrad Nuclear Power Plant, branch of the Rosenergoatom Concern JSC, Sosnovy Bor, Leningrad region, Russia

#### **Abstract**

The paper presents software intended for interpretation of readings from self-powered neutron detectors (SPND) that are part of the in-core instrumentation system. The readings are used to diagnose both detector itself and fuel element performance.

The software can interpret SPND readings obtained under both steady state and transient reactor core conditions. Measurements made under transient conditions are used to determine the coefficients of neutron flux dynamics that are calculated by analogy with determination of reactivity values from output signals of ion chambers in the reactor control and protection system.

Key words: detector, condition monitoring, nuclear reactor, neutron flux, fuel element.

### Введение

В реакторах типа ВВЭР для контроля распределения нейтронного потока в активной зоне реактора широко применяются датчики прямого заряда (эмиссионные детекторы прямого заряда (ДПЗ)), в частности, родиевые ДПЗ [1]. Детекторы данного типа представляют собой источники тока, разность потенциалов на контактах которых создается за счет кинетической энергии заряженных частиц, образующихся при распаде радиоактивных ядер материала эмиттера.

ДПЗ состоят из эмиттера, коллектора, а также разделяющего их диэлектрика. На эмиттере под воздействием нейтронного облучения реактора образуются заряженные частицы. Покидая эмиттер и достигая коллектора, данные частицы создают разность потенциалов между эмиттером и коллектором. К эмиттеру подсоединяется сигнальная жила линии связи, а его оболочка заземляется. Выходным сигналом ДПЗ является электрический ток, протекающий через измеритель тока, подсоединенный к сигнальной жиле и оболочке эмиттера. Сила тока во внешней измерительной цепи детектора пропорциональна плотности потока нейтронов в месте его установки.

В стационарных режимах работы реактора используются активационные (инерционные) ДПЗ, а в переходных – комптоновские.

Среди инерционных датчиков на сегодняшний день наиболее широкое распространение получили ДПЗ с эмиттером из родия, серебра и ванадия. Из данных металлов наибольшее предпочтение отдается родию, вследствие его большого сечения активации и высокой энергии эмитируемых частиц, что обеспечивает его хорошую чувствительность. Так, чувствительность датчика к тепловым нейтронам и надтепловым нейтронам у родиевых ДПЗ составляет  $21 \cdot 10^{-20}$  и  $63 \cdot 10^{-20}$  (а ·cм² · c)/(м · нейтр), соответственно. При регистрации гамма-квантов чувствительность составляет  $19 \cdot 10^{-16}$  (а ·см² · c)/(м · нейтр). У ДПЗ с эмиттером из ванадия эти величины равны, соответственно,  $1.5 \cdot 10^{-20}$ ,  $0.53 \cdot 10^{-20}$  и  $18 \cdot 10^{-16}$ , а для ДПЗ с эмиттером из серебра  $-9 \cdot 10^{-20}$ ,  $38 \cdot 10^{-20}$  и  $21 \cdot 10^{-16}$  (а ·см² · с)/(м · нейтр) [1].

В активационных ДПЗ значительный вклад в выходной ток датчика вносят  $\beta$ -частицы, возникающие при реакции  $\beta$ -распада изотопа Rh-104 в эмиттере, в который переходит Rh-103 под воздействием нейтронного излучения. Данная составляющая тока называется активационной. Также в токе ДПЗ присутствует составляющая, обусловленная комптонэффектом, а также фотоэлектронами, возникающими при взаимодействии  $\gamma$ -квантов с эмиттером датчика [2].

Помимо этого, несколько процентов от выходного тока датчика составляют токи, наводящиеся в сигнальной и компенсационной жилах линии связи этого типа детектора нейтронного потока. Их возникновение обусловлено нейтронным излучением и  $\gamma$  – полем активной зоны, через которую проходит линия связи.

В комптоновских ДПЗ активационная составляющая тока считается равной нулю. В качестве эмиттера в таких датчиках используются кадмий, гадолиний, кобальт и платина, эрбий и гафний. Главным преимуществом комптоновских ДПЗ является их практическая безынерционность по основному токообразующему процессу. Однако такие датчики обладают малой чувствительностью по сравнению с активационными. Так, для кобальтовых ДПЗ чувствительность к тепловым нейтронам составляет  $0.17 \cdot 10^{-20}$  (a cm²·c)/(м·нейтр). Для платиновых датчиков данная величина составляет  $0.04 \cdot 10^{-20}$  (a cm²·c)/(м·нейтр), что гораздо ниже чувствительности к тепловым нейтронам активационных ДПЗ [1].

# Корректировка токового сигнала датчика в переходных режимах

При переходных процессах показания родиевых ДПЗ не пропорциональны нейтронной мощности активной зоны по причине инерционности детектора (датчика), связанной с испусканием дополнительных  $\beta$  – частиц. Это приводит к возрастанию погрешности в оценке поля энерговыделения реактора [3] по показаниям ДПЗ, если не учитывать вклад таких дополнительных электронов. В связи с этим, принимались меры по определению возможности коррекции активационной части выходного электрического тока данных детекторов и устранению их инерционности. В работе [3] предлагалось представить в дискретном виде уравнения системы, описывающей зависимость тока родиевого ДПЗ от воздействующего на него нейтронного потока, поскольку результаты измерений тока известны только в дискретные моменты времени.

С.А. Цимбаловым было предложено устранять инерционность детектора путем определения так называемого нормализованного тока ДПЗ, который численно равен току насыщения при потоке нейтронов в момент времени t, при помощи фильтра Калмана [4]. С помощью данного фильтра производится оценка и устранение «шумов» нормализованного тока ДПЗ, что дает быстрое и точное его восстановление. Алгоритм работает итеративно. На каждом шаге он использует текущие значения измеренного тока ДПЗ, а также учитывает вектор величин, характеризующих состояние ДПЗ на предыдущем шаге. Кроме этого, при помощи фильтра Калмана возможно отслеживать разброс значений для каждой переменной в векторе состояния системы. Имея модель системы, фильтр Калмана позволяет вычислять, каким будет состояние системы в последующие моменты времени.

В работах [5] и [6] также использовались различные варианты электронных корректоров инерционности в измерительной цепи ДПЗ. В работе [5] ток ДПЗ поступает в электрометрический усилитель, где преобразуется в напряжение, поступающее непосредственно на корректор, при выходе с которого получается величина напряжения пропорциональная величине плотности потока нейтронов в месте расположения датчика. Во втором варианте, предложенном в той же работе, корректор представляет собой электронный имитатор ДПЗ, включенный в цепь отрицательной обратной связи с большим коэффициентом усиления. В статье [6] рассматривалась возможность использования ДПЗ в качестве составной части малоинерционного нейтронного измерительного канала. Коррекция инерционности детектора производилась при помощи электронной аппаратуры, моделирующей обратную передаточную функцию ДПЗ.

В данной работе для определения инерционности родиевого ДПЗ при изменении нейтронного потока в переходных процессах в активной зоне реактора создана расчетная программа в программной среде Matlab. При создании алгоритма программы была использована математическая модель генерации токов родиевого ДПЗ [1].

Активационная составляющая тока ДПЗ определяется по формуле:

$$I_{a}(t) = ek_{a}\lambda_{I}C_{I}, \tag{1}$$

где e — заряд электрона;  $k_a$  — коэффициент поглощения электронов в материалах эмиттера и изолятора;  $\lambda_1$  — постоянная распада  $\pmb{Rh-104}$ ;  $C_1$  — концентрация  $\pmb{Rh-104}$  в эмиттере.

Комптоновская составляющая тока ДПЗ определяется как:

$$I_{\kappa}(t) = ek_{\kappa}F(t)C_{0}(\sigma_{1} + \sigma_{2}), \tag{2}$$

где  $k_{\kappa}$  — коэффициент перехода от  $\gamma$ -квантов  $\kappa$  комптоновским электронам (фотоэлектронам); F(t) — поток нейтронов (н/см²·с),  $C_0$  — концентрация  $\it Rh-103$ ,  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  — микросечения взаимодействия  $\it Rh-103$  с интересующим нас нейтронным потоком, приводящие  $\kappa$  появлению  $\it Rh-104$   $\it u$   $\it Rh-104$  $\it m$ , соответственно.

Нейтронный поток F(t) в тестовой задаче аппрксимировался линейной функцией с диапазоном изменения от  $10^{13}$  до  $2\cdot10^{13}$  н/см<sup>2</sup>·с. Концентрация **Rh-103** принималась постоянной (предполагалось, что эмиттер ДПЗ не выгорает, т.е. не меняется величина  $C_0$ ).

Изменение концентрации *Rh-104m* определялось путем решения уравнения:

$$\frac{dC_2}{dt} = \sigma_2 F(t) C_0 - \lambda_2 C_2(t) - \sigma_3 F(t) C_2(t), \tag{3}$$

где  $C_2(t)$  — концентрация  $\it Rh-104m$ ;  $\lambda_2$  — период полураспада  $\it Rh-104m$ ;  $\sigma_3$  — микросечение взаимодействия  $\it Rh-104m$  с нейтронами, приводящее к появлению  $\it Rh-105$ .

Изменение концентрации *Rh-104* рассчитывалось на основе уравнения:

$$\frac{dC_{1}}{dt} = \sigma_{1}F(t)C_{0} - \lambda_{1}C_{1}(t) + \lambda_{2}C_{2}(t) - \sigma_{4}F(t)C_{1}(t), \tag{4}$$

где  $C_1(t)$  — концентрация **Rh-104**;  $\lambda_1$  — период полураспада **Rh-104**;  $\sigma_4$  — микросечение взаимодействия **Rh-104** с нейтронами, приводящее к появлению **Rh-105**.

# Программное обеспечение и расчетное исследование для получения оценок токовых сигналов родиевых ДПЗ

На основе математической модели, представленной формулами (1)–(4), в среде Matlab была создана расчётная программа для определения степени инерционности родиевого ДПЗ.

Дифференциальные уравнения для нахождения концентраций  $\it Rh-104$  и  $\it Rh-104m$  решались с использованием простейших численных методов для отрезка времени от  $\it t=0$  до  $\it t=500$  с шагом  $\it h=1$  с. При  $\it t=0$  до  $\it t=250$  с величина нейтронного потока оставалась постоянной –  $\it 10^{13}$  н/см $\it ^2$ -с. На протяжении следующих 250 с она линейно возрастала до  $\it 2\cdot10^{13}$  н/см $\it ^2$ -с.

В результате пробных расчетов были получены графики изменения концентрации изотопов  $\it Rh-104$  и  $\it Rh-104m$  в эмиттере, изменения активационной и комптоновской составляющей тока ДПЗ, а также изменения отношения комптоновского тока детектора к полному в зависимости от времени (рис. 1, 2 и 3).

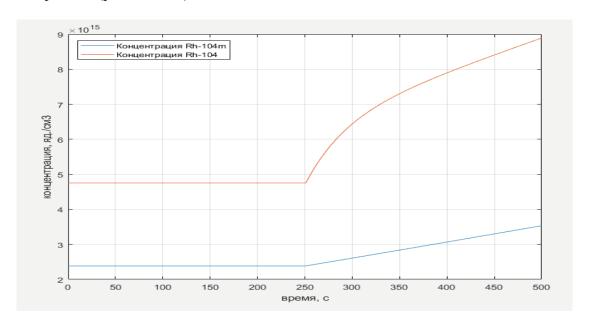


Рис. 1. Изменение концентрации изотопов *Rh-104m* и *Rh-104* в эмиттере датчика

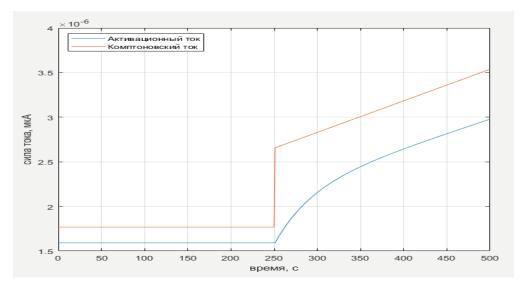


Рис. 2. Изменение активационной и комптоновской составляющей тока ДПЗ

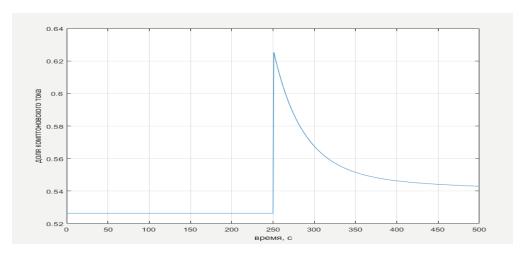


Рис. 3. Изменение отношения комптоновской составляющей тока ДПЗ к полному току

Из рис. З видно, что с началом роста нейтронного потока доля комптоновского тока резко возрастает, но затем начинает падать, приближаясь к стационарному значению в конце рассматриваемого временного периода. Выход на стационарное значение связан с периодом полураспада Rh-104m, составляющим 4.3 мин. При помощи полученных графиков становится возможным определить долю комптоновского и активационного токов ДПЗ в рассматриваемые моменты времени.

С целью возможности варьирования компонентов, входящих в состав математической модели и изучения их влияния на инерционность ДПЗ, расчётная программа для определения степени инерционности родиевого ДПЗ была использована как основа для создания виртуального прибора в пакете LabVIEW при помощи модуля MathScript, позволяющего запускать программы пакета Matlab в LabVIEW.

Во вспомогательной программе (пакет LabVIEW) выполняется варьирование переменных, входящих в основную программу (пакет Matlab), в реальном времени. В качестве переменных величин были выбраны значения микросечений взаимодействий изотопов эмиттера датчика с нейтронами, периоды их полураспада, коэффициенты моделируемой функции нейтронного потока, а также коэффициенты поглощения электронов и перехода γ-квантов к комптоновским электронам (фотоэлектронам).

На передней панели виртуального прибора производится ввод изменения значений данных параметров в их относительных величинах в диапазоне от 0 до 10 (рис. 4).

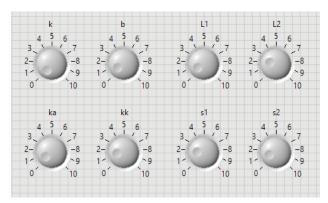


Рис. 4. Ввод относительных изменений параметров, установленных в программном блоке LabVIEW:

k, b – изменение коэффициентов функции нейтронного потока;

L1, L2 — изменение периодов полураспада *Rh-104m* и *Rh-104*; ka — изменение коэффициента поглощения электронов в материалах эмиттера и изолятора; kk — изменение коэффициента перехода от гамма-квантов к комптоновским и фотоэлектронам; s1, s2 — изменение сечений взаимодействия *Rh-103* с нейтронами, приводящее к появлению *Rh-104m* и *Rh-104*.

Данные по относительным изменениям (по отношению к заданным реперным значениям) варьируемых в пакете LabVIEW затем переводятся в абсолютные значения в основной расчетной программе (пакет Matlab).

Вычисленные в основной расчетной программе значения далее передаются на осциллографы во вспомогательной программе в пакете LabVIEW, в которой показываются зависимости от времени концентраций *Rh-104m* и *Rh-104*, комптоновского и активационного токов, нейтронного потока, а также доли комптоновского тока в полном токе ДПЗ (рис. 5). Значения на осциллографах пересчитываются каждый раз при повороте ручки, отвечающей за соответствующий параметр математической модели, который необходимо изменить.

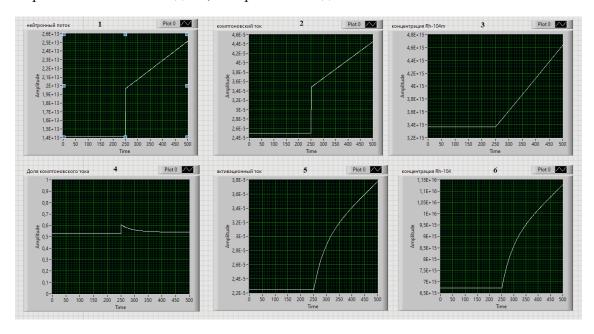


Рис. 5. Осциллографы передней панели программы в LabVIEW: 1 – изменение нейтронного потока; 2 – изменение комптоновского тока; 3 – изменение концентрации *Rh-104m*; 4 – изменение доли комптоновского тока в общем; 5 – изменение активационного тока; 6 – изменение концентрации *Rh-104* 

Таким образом, при помощи подпрограммы в пакете LabVIEW становится возможным оценить влияние изменения компонентов математической модели ДПЗ на параметры, отслеживаемые на осциллографах, при их изменении в реальном времени.

Созданное программное обеспечение является частью более сложной задачи по использованию токовой информации с инерционных ДПЗ для контроля состояния элементов активной зоны в процессе отработки её кампании и на данном этапе решения этой задачи верификация представленных математических моделей не проводилась.

# Учет параметров элементов измерительной схемы ДПЗ в переходных режимах работы ядерного реактора

При измерении токовых величин в переходных процессах, имеющих место в электрических цепях при изменении генерирующей способности активных элементов цепи в виде источников электрического тока или напряжения, необходимо учитывать и наличие в таких цепях реактивных элементов в виде паразитных емкостей или индуктивностей протяженных линий связи измерительной цепи датчика. Поскольку линия связи между эмиттером ДПЗ и измерителем тока может составлять несколько десятков метров, то величина электрической емкости между центральной жилой измерительного кабеля и его экраном может повлиять на картину изменения электрического тока от времени при изменении нейтронного потока в активной зоне ядерного реактора.

В работах авторов [7, 8] показано, как в экспериментальных режимах эта величина может быть определена для последующего учета в динамических режимах работы ядерного реактора. В данной работе приведем эквивалентную электрическую схему замещения измерительной цепи ДПЗ, которая представлена на рис. 6.

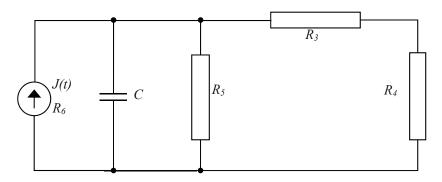


Рис.6. Эквивалентная электрическая схема замещения измерительной цепи ДПЗ в рабочем режиме

На представленной схеме: ДПЗ в виде источника тока с параметрами J(t),  $R_6$ ; C — существующая емкость кабеля измерительной цепи, которая в стационарном режиме работы рассматривается как разрыв;  $R_3$  — резистор, необходимый для обеспечения диагностического режима работы;  $R_4$  — нагрузочное сопротивление, через которое протекает измеряемый ток датчика;  $R_5$  — сопротивление изоляции кабеля измерительного канала;  $R_6$  — внутреннее сопротивление датчика; J(t) — ток датчика на внутреннем участке цепи, обусловленный основными носителями заряда  $\beta$  -частицы).

Нумерация ветвей схемы измерительной цепи представлена в соответствии с принятым в работе [8] порядком нумерации элементов цепи. Он был обусловлен рассмотрением расширенной электрической схемы для реализации диагностического режима, который и приводил к определению емкости C.

На основе законов Кирхгофа и уравнений для элементов цепи для представленной на рис. 6 схемы может быть записана система алгебраических уравнений (5):

$$\begin{cases}
-i_{3} + i_{4} = 0 \\
i_{2} + i_{4} + i_{5} - i_{6} = 0 \\
-u_{2} + u_{4} = 0 \\
-u_{2} + u_{5} = 0 \\
u_{2} + u_{6} = 0
\end{cases};
\begin{cases}
i_{2} = C \frac{du_{2}}{dt} \\
u_{3} = R_{3}i_{3} \\
u_{4} = R_{4}i_{4} \\
u_{5} = R_{5}i_{5} \\
u_{6} = R_{6}i_{6} - J(t)i_{6}
\end{cases}$$
(5)

Система (5) может быть использована для определения расчетным путем тока датчика  $i_4 = i_4(t)$ , который протекает через нагрузочное сопротивление  $R_4$  и может быть измерен в динамическом процессе работы ядерного реактора с некоторой частотой дискретизации. Но нас в данном случае будет интересовать другая задача: по измеренному значению тока  $i_4(t)$  определить ток источника тока в виде ДПЗ, а именно найти временную функцию J(t). Именно эта функция определяет изменение нейтронного потока F(t) (см. формулу (2)) в месте нахождения датчика. До нахождения нейтронного потока F(t) функцию J(t) (или измеренный ток  $i_4(t)$ ) предлагается откорректировать так, как это представлено в разделе 1 чтобы исключить активационную составляющую электрического тока из полной величины тока, получаемого непосредственно при измерениях на нагрузочном резисторе  $R_4$ .

# Определение величины реактивности на основе точечной модели кинетики

Величина реактивности определяется на основе показаний ионизационных камер, находящихся вне активной зоны. Для этого используется цифровой реактиметр, математическая модель которого представляется хорошо известным выражением для вычисления реактивности в модели точечной кинетики реактора [9, 10].

Константы по запаздывающим нейтронам могут быть взяты из общеизвестных источников [11].

Выражение для реактивности получается на основе метода обращенного решения уравнений кинетики в дискретных точках по времени [9]. Это выражение может быть представлено в виде:

$$\frac{\rho}{\beta} = \frac{\Lambda}{\beta} \frac{1}{P(t)} \frac{dP(t)}{dt} + \frac{1}{P(t)} \int_{-\infty}^{t} \sum_{j=1}^{M} \alpha_j P(t') \exp[-\lambda_j (t - t')] dt', \qquad (6)$$

где

 $\rho$  — вычисляемая по формуле (6) величина реактивности в отн ед.,

Λ – время генерации мгновенных нейтронов,

 $\beta$  — эффективная доля запаздывающих нейтронов,

P(t) – мощность реактора,

 $\lambda_{i}$  — постоянная распада j -й группы ядер-предшественников запаздывающих нейтронов,

 $\vec{a}_i$  – нормировочный коэффициент для j-й группы запаздывающих нейтронов,

M -число групп запаздывающих нейтронов.

При этом под реактивностью понимается параметр, определяющий отклонение среды, в которой протекает цепная ядерная реакция, от критичности таким образом, что положительные значения параметра соответствуют надкритическому состоянию, отрицательные – подкритическому.

На вход цифрового реактиметра поступает импульсно-токовый аналоговый сигнал – информация в виде скорости счета N, а на его выходе определяется реактивность  $\rho$  (t), в соответствии с формулой (6) и с учетом того, что P(t) = N(t). Во входном блоке реактиметра фильтруется аналоговый сигнал и преобразуется в цифровой. При этом рассматривается диапазон изменения сигнала, имп./с: в импульсном  $10^3 - 10^6$ , в токовом режиме  $10^{-8} - 10^{-3}$  А.

В реактиметре непрерывно вычисляется реактивность в диапазоне от  $-25\rho/\beta$  до  $+0.9\rho/\beta$  с определенной частотой дискретизации. Возможна операция сглаживания выходного сигнала [10].

В настоящей работе для вычисления реактивности по изменяющемуся нейтронному потоку была использована программа, написанная в пакете Matlab с учетом формулы (6). При этом величина коэффициента реактивности вычисляется по выходным сигналам ионизационных камер (ИК) системы управления и защиты. Однако и выходной ток ИК и выходной сигнал ДПЗ, находящегося вблизи от этой ИК, зависят от величин нейтронного потока вблизи поверхностей нейтронных детекторов. Поскольку между потоками нейтронов, падающих на поверхность этих детекторов, существует связь, определяемая расчетным путем в разные моменты кампании активной зоны, то и между выходными сигналами детекторов в переходных режимах может иметь место корреляционная зависимость. При ее определении в выходной токовый сигнал ДПЗ целесообразно ввести поправки, на основе материалов, представленных в разделах 1–3.

# Обработка информации по токовым сигналам родиевых ДПЗ, полученной на реакторе ВВЭР

Токовая информация с внутризонных ДПЗ в стационарных режимах работы активной зоны дает возможность построить распределение нейтронного потока по объему активной зоны и, как следствие, получить объемное распределение энерговыделения и, в итоге, полную мощность реакторной установки. При рассмотрении динамических режимов в разные моменты времени по кампании активной зоны следует иметь в виду, что с активной зоны ядерного реактора должна сниматься номинальная величина мощности (нейтронной, тепловой и т.д.). Поскольку в процессе кампании происходит выгорание части топлива в виде делящихся изотопов, входящих в состав сердечников тепловыделяющих элементов, то для сохранения интегральных характеристик по нейтронному потоку и энерговыделению нужно выводить из активной зоны часть поглощающих нейтроны материалов. Это может быть выполнено, например, путем перемещения тех или иных органов регулирования, которые и содержат поглощающие элементы. В результате происходит перераспределение нейтронного потока по объему активной зоны. Это наблюдается в статических режимах в разные моменты по кампании. Что происходит в динамических режимах в отдельных объемах активной зоны в разные моменты по кампании можно определить на основе соответствующих расчетных программ (кодов).

Использование экспериментальных результатов по внутризонным детекторам нейтронов может быть направлено на уточнение расчетных результатов для обеспечения безопасности ядерного реактора в нестационарных (переходных) режимах.

В данной работе для оценки изменения размножающих свойств отдельных частей (объемов) активной зоны в процессе кампании предлагается использовать коэффициенты динамики нейтронного потока, определяемые как относительные изменения величины нейтронного потока за единицу времени при введении заданной реактивности. Величина реактивности, вводимой в активную зону в том или ином динамическом режиме, может определяться по показаниям ионизационных камер. Коэффициенты динамики определяются по величине токового сигнала ДПЗ, находящегося в указанном объеме активной зоны, например, в соответствии с рис. 7.

На рис. 7 представлена картограмма расположения в активной зоне реактора ВВЭР-1200 тепловыделяющих сборок с ДПЗ (выделены желтым цветом), а также расположение ИК системы управления и защиты в диапазоне ПД-РД (пусковой-рабочий диапазон), находящихся за пределами активной зоны в баке сухой защиты.

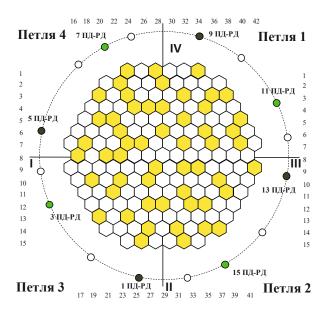


Рис. 7. Картограмма расположения каналов с ДПЗ и ИК реактора ВВЭР-1200

Особое значение для детализации величин, характеризующих изменение размножающих свойств по объему активной зоны в процессе кампании, имеет большое количество датчиков ДПЗ в системе внутриреакторного контроля реактора ВВЭР-1200, позволяющее давать оценки по распределению этих величин не только по высоте активной зоны, но и по радиусу при рассмотрении активной зоны в (r, z) геометрии.

На рис. 8 представлены экспериментальные данные по величинам токов ДПЗ в переходном (динамическом) режиме в одном из каналов ВВЭР-1200. Представлены данные по 7-ми датчикам, расположенным по высоте активной зоны, с шагом по времени в 1 сек. для ~ 1100 точек.

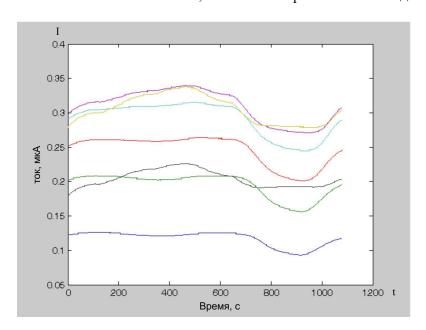


Рис. 8. Изменение экспериментальных величин токовых сигналов ДПЗ в переходном режиме

Как видно из рис. 8, переходной режим был завершен возвратом реактора в стационарное состояние.

#### Заключение

- 1. С использованием пакета Matlab разработано программное обеспечение, позволяющее учесть инерционность родиевого ДПЗ при изменении нейтронного потока в переходных режимах в активной зоне ядерного реактора.
- 2. Включение данного программного обеспечения в состав пакета LabVIEW и создание на его основе виртуального прибора позволяет определить влияние параметров математической модели ДПЗ на его инерционность.
- 3. Использование созданного программного обеспечения, включающего программы расчета инерционности датчика, обработки экспериментальной информации, расчета реактивности и ряд других программ, совместно с программами расчета ячеек активной зоны, позволяет подойти к решению задачи оценки изменения размножающих свойств в отдельных частях активной зоны в процессе выгорания тепловыделяющих элементов на основе показаний датчиков прямого заряда системы внутриреакторного контроля реактора.

#### **Conclusions**

- 1. Based on MATLAB package, software is developed to account for delayed time of Rhodium SPND response to changes in neutron flux under reactor core transients.
- 2. Incorporation of the developed software into LabVIEW package and creation of a virtual device based on this software allows for determining the effect of SPND mathematical model parameters on the detector response.
- 3. The developed software contains programs for calculation of the detector response time, processing of experimental data, calculation of reactivity, and others. Using SPND readings, this software together with programs for calculation of reactor core cells evaluates the change of the neutron-multiplying characteristics in reactor core regions during fuel burnup.

# Литература

- 1. *Мительман М.Г.* Детекторы для внутриреакторных измерений энерговыделения / М.Г. Мительман, Б.Г. Дубовский, В.Ф. Любченко. М.: Атомиздат, 1977. 152 с.
- 2. *Цимбалов С.А.* Характеристики родиевого детектора нейтронов ДПЗ-1М. М.: Институт атомной энергии им. И.В. Курчатова, 1984. 20 с.
- 3. Математическая модель родиевых ДПЗ и алгоритмы коррекции их инерционности / В.И. Бурьян, Л.В. Козлова, А.С. Кужиль, В.Ф. Шикалов // Ядерные измерительно-информационные технологии. 2005. № 1(13). С. 1–10.
- 4. *Цимбалов С.А.* Устранение запаздывания показаний бета-эмиссионного детектора в реакторе ВВЭР-1000. М.: Институт атомной энергии им. И.В. Курчатова, 1994. 21 с.
- 5. Безынерционный контроль уровня нейтронного потока датчиком прямой зарядки с эмиттером из серебра / И.Я. Емельянов, М.А. Борисов, Ю.И. Володько Ю.И. [и др.] // Атомная энергия. 1969. Т. 27, вып. 3. С. 230 232.

- 6. Испытания малоинерционного нейтронного измерительного канала на основе родиевого ДПЗ АМБ-200 / Ю.В. Волков, В.В. Дубровский, С.Н. Ковтун [и др.] // Атомная энергия. 1990. Т. 68, вып. 2. С. 101–104.
- 7. Пат. РФ № 2 783505. Панкин А.М. Способ контроля технического состояния датчика прямого заряда системы внутриреакторного контроля ядерного реактора / А.М. Панкин, Н.В. Коровкин, А. А. Калютик. Опубл. 14.11.2022. Бюл. «Изобретения. Полезные модели» № 32.
- 8. *Панкин А.М.* Контроль состояния датчиков прямого заряда системы внутриреакторного контроля ядерного реактора в динамических режимах / А.М. Панкин, А.А. Калютик, Н.В. Коровкин // Контроль. Диагностика. − 2023. − Т. 26, № 3. − С. 50–55.
- 9. Казанский Ю.А. Кинетика ядерных реакторов. Обнинск: ИАТЭ, 2003. 96 с.
- 10. *Василенко В.А.* Калибратор реактивности / В.А. Василенко, А.М. Панкин, К.В. Скворцов // Атомная энергия. 2018. Т. 125, вып. 3. С. 141–145.
- 11. *Кипин Дж.Р.* Физические основы кинетики ядерных реакторов. М.: Атомиздат, 1967. 428 с.

УДК: 544.56 DOI: 10.52069/2414-5726 2023 3 33 50

# Совершенствование технологии дезактивации оборудования ядерных энергетических установок со свинцово-висмутовым теплоносителем

С.Н. Орлов, А.А. Змитродан, А.М. Алешин, П.Н. Зуев, В.В. Кривобоков

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

### Аннотация

Химические технологии дезактивации оборудования занимают важное место в обеспечении ядерной и радиационной безопасности на протяжении всего жизненного цикла ядерных энергетических установок.

В статье приведены результаты исследования эффективности предлагаемых авторами рецептур для дезактивации оборудования первого контура ядерных энергетических установок со свинцовым и свинцово-висмутовым теплоносителем.

**Ключевые слова:** ядерные энергетические установки, свинцово-висмутовый теплоноситель, химическая дезактивация, магнетит, водные растворы кислот.

# Improvement of equipment decontamination technology for propulsion reactor plants with lead-bismuth coolant

S.N. Orlov, A.A. Zmitrodan, A.M. Aleshin, P.N. Zuev, V.V. Krivobokov

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

#### **Abstract**

Chemical decontamination technologies are important for ensuring the safety of nuclear propulsion reactor plants throughout their life cycle.

The paper presents results of studies on the effectiveness of chemical compositions developed by the paper's authors for decontaminating the primary circuit equipment of nuclear propulsion reactor plants with lead and lead-bismuth coolants.

**Key words**: nuclear propulsion reactor plants, lead-bismuth coolant, chemical decontamination, magnetite, aqueous solutions of acids.

# Введение

В настоящее время в мире наблюдается растущий интерес к ядерным энергетическим установкам (ЯЭУ) с тяжелым жидкометаллическим теплоносителем (ТЖМТ) свинец и свинец-висмут. Использование ЯЭУ со свинцовым и свинцово-висмутовым теплоносителем признано одним из перспективных направлений развития ядерной энергетики [1]. ЯЭУ с ТЖМТ первого контура обладают рядом преимуществ по сравнению водо-водяными реакторами: более высокой рабочей температурой и теплоемкостью теплоносителя, низким давлением в контуре, внутренне присущая им (естественная) безопасность. В тоже время для эффективной и безопасной эксплуатации ЯЭУ с ТЖМТ требуется своевременная разработка соответствующих технологий обеспечения жизненного цикла, в том числе связанных с дезактивацией и коррозионной защитой.

Немаловажное значение имеет разработка способов (технологий) очистки и дезактивации контурного оборудования от эксплуатационных отложений. Связано это с тем, что физико-химический и фазовый состав эксплуатационных отложений, формирующихся на поверхностях оборудования, работающего в ТЖМТ, существенным образом отличается от отложений, образующихся в среде традиционных теплоносителей (вода, щелочные металлы). В частности, в циркуляционных контурах с жидким свинцово-висмутовым теплоносителем протекает ряд физико-химических процессов, характерных для контуров и с другими ТЖМТ. К ним относятся: поступление в контур и теплоноситель примесей, их взаимодействие между собой и с теплоносителем с образованием шлаков, термический и изотермический перенос масс, осаждение примесей на поверхностях основного циркуляционного контура теплоносителя, загрязнение поверхностей оборудования газового контура примесями и продуктами испарения теплоносителя и др.

Основными компонентами загрязнений, образующихся на поверхностях оборудования реакторной установки (РУ) с ТЖМТ в процессе его эксплуатации и извлечения из первого контура являются:

- «рыхлый» слой отложений, представляющий собой застывший на поверхностях теплоноситель, его оксиды и сложные по составу шлаковые отложения, содержащие смесь частиц примесей  $\gamma$ -Fe, Pb, Bi, PbO, Bi $_2$ O $_3$  Fe $_3$ O $_4$ , Fe $_2$ O $_3$ ,  $\alpha$ -Al $_2$ O $_3$  и др.;
- плотный защитный слой отложений, содержащий оксиды металлов, входящих в состав конструкционных материалов контура, и имеющий структуру шпинели типа  $Ni_xFe_{3-x-y}Cr_yO_4$ , где x и y переменные.

# Цели и способы отмывки и дезактивации оборудования

Как показал опыт эксплуатации ЯЭУ со свинцово-висмутовым теплоносителем [2] количество «рыхлых» — эксплуатационных отложений на 1 м² поверхности съемного оборудования, извлекаемого из первого контура, может достигать 0.5–1.0 кг. При этом основными радионуклидами, определяющими радиационную обстановку (дозовые нагрузки на персонал) в зоне проведения регламентных работ по контролю состояния металла, техническому обслуживанию и ремонту оборудования, являются изотопы, образующиеся в результате активации самого теплоносителя и его основных примесей (210 Po, 203 Pb, 207 Bi, 197,203 Hg, 110 m Ag, 198 Au и др.) и примесей металлов, перешедших в теплоноситель из конструкционных материалов первого контура (58,60 Co, 59 Fe, 51 Cr, 54 Mn, 63 Ni и др.). Все они, в основном, входят в состав «рыхлых» отложений.

Таким образом, целями дезактивации является удаление загрязнения с поверхностей конструкционных материалов ЯЭУ с ТЖМТ, источниками которых могут быть [3]:

- остатки ТЖМТ с радионуклидами его активации и примесей (<sup>210</sup>Po и др.);
- окисленные продукты теплоносителя (оксиды свинца и висмута), загрязненные радионуклидами продуктов коррозии <sup>58</sup>Со, <sup>60</sup>Со, <sup>54</sup>Мп. В случае не герметичности активной зоны из поврежденных ТВЭЛ как самостоятельная фаза загрязнений могут поступать продукты деления ядерного топлива (ЯТ): <sup>137</sup>Сs, <sup>134</sup>Сs, <sup>90</sup>Sr., <sup>131</sup>I;
- оксидные пленки и отложения мелкодисперсных продуктов коррозии конструкционных материалов (в основном, в виде магнетита), загрязненные радионуклидами продуктов коррозии и продуктов деления ЯТ (в случае не герметичности активной зоны) из поврежденных ТВЭЛ;
- ЯТ и продукты его размыва (как правило это соединения двуокиси урана).

Присутствие остаточных загрязнений может приводить к усложнению условий проведения ремонтных работ и дополнительным дозозатратам для персонала. При нормальной эксплуатации подлежат периодическому или эпизодическому извлечению (и отмывке от остатков ТЖМТ) перегрузочное оборудование первого контура, выемная часть ГЦНА, внешние и внутренние поверхности корпусов фильтров и массообменников и т. д. При аварийных ситуациях – отмывке от остатков ТЖМТ могут подвергаться конструкции парогенератора. Также возможны отложения на поверхностях оборудования газовой системы в виде "пыли" и конденсата паров теплоносителя. При выводе из эксплуатации ЯЭУ, в том числе выше перечисленное оборудование, подлежит дезактивации. По имеющимся данным на поверхности образцов сталей может удерживаться до 40 мг/см² свинца (для сталей X15Н9 и Х9Н) с толщиной слоя ~ 0.04 мм [4].

# Назначение процесса отмывки и дезактивации оборудования

Получение относительно чистых поверхностей конструкционных материалов, содержащих допустимое количество ТЖМТ и радиоактивных загрязнений, для обеспечения возможности проведения ремонтных работ оборудования без усложнения условий и дополнительных дозозатрат для персонала.

#### Основные требования к отмывке и дезактивации оборудования:

- отсутствие коррозионного воздействия отмывочных растворов на конструкционные материалы оборудования;
- процесс отмывки не должен приводить к ухудшению механических свойств конструкционных материалов, качества оксидной пленки на поверхности стали.

Определяющими факторами при разработке процессов отмывки и дезактивации являются:

- назначение процесса (возможность повторного использования оборудования либо вывод его из эксплуатации);
- габариты отмываемого оборудования;
- эффективность и управляемость процесса;
- безопасность процесса (исключение возможности взрыва, пожара, экологического загрязнения);
- отсутствие коррозионного повреждения конструкционных материалов (оксидной пленки) под действием используемых реагентов;
- кинетика процесса;
- доступность используемых реагентов;
- объем и состав образующихся отходов;
- конструктивная сложность установки дезактивации.

# Способы дезактивации должны удовлетворять следующим требованиям:

- обеспечивать эффективное удаление с поверхностей радиоактивных загрязнений остатков ТЖМТ и его шлаков со стальных поверхностей реакторного оборудования, в том числе из геометрически сложных его компонентов (желательно в низкотемпературных (Т менее 80 °C), регулируемых, контролируемых условиях);
- быть коррозионно-безопасным в отношении дезактивируемого конструкционного материала и защитных оксидных пленок (покрытий) на его поверхностях;
- не вызывать механического разрушения (повреждения) дезактивируемых материалов;
- количество радиоактивных отходов должно быть минимальным;

 способы дезактивации должны быть экономичными, безопасными, не приводить к распространению радиоактивных загрязнений, допускать возможность их механизации [3].

В настоящий момент существует два основных подхода к дезактивации оборудования РУ с СВТ:

- 1. Дезактивация водными растворами органических и минеральных кислот с добавлением окислителя (обычно пероксида водорода).
- 2. Дезактивация рецептурами на основе органических растворителей.

При дезактивации водными растворами применяют кислоты, для которых характерна максимальная растворимость солей свинца и висмута — уксусную и азотную. В качестве окислителей используют пероксид водорода и нитрит натрия. Показано [1], что в случае применения пероксида водорода скорость растворения свинцово-висмутового сплава в 50 раз выше, чем при использовании нитрита натрия, а при применении уксусной кислоты — в три раза выше, чем при использовании азотной.

В работе [5] показано, что максимальная скорость растворения сплава наблюдается при концентрациях реагентов: пероксида водорода – 30 %, уксусной кислоты – 40 % по массе, соответственно. Увеличение концентрации реагентов выше приведенного значения приводит к снижению скорости растворения сплава. Оптимальная температура проведения дезактивации составляет порядка 40 °C, то есть значительного нагрева дезактивирующего раствора не требуется.

Механизм растворения свинца и висмута в водном растворе пероксида водорода и уксусной кислоты выглядит следующим образом [6]:

1) Первый шаг – окисление металлов пероксидом водорода:

$$Pb + H_2O_2 \rightarrow PbO + H_2O \tag{1}$$

$$2Bi + 3H2O2 \rightarrow Bi2O3 + H2O$$
 (2)

2) Второй шаг – растворение оксидов в уксусной кислоте:

$$6CH3COOH + Bi2O3 \rightarrow 2(CH3COO)3Bi + 3H2O$$
 (3)

$$2CH_{2}COOH + PbO \rightarrow (CH_{2}COO)_{2}Pb + H_{2}O$$
 (4)

3) Третий шаг – гидролиз ацетата висмута:

$$Bi(CH_3COO)_3 + H_2O \rightarrow BiOCH_3COO + 2CH_3COOH$$
 (5)

Коррозионная потеря массы стальных образцов в растворе, содержащем 30 % пероксида водорода и 40 % уксусной кислоты по массе, не превышает 0.5 % при выдержке порядка 150 часов.

Дополнительным преимуществом применения раствора пероксида водорода и уксусной кислоты является эффективное растворение в нем топливной композиции [7], в случае ее присутствия на поверхностях в результате разгерметизации твэлов.

В тоже время, для рассматриваемого варианта дезактивирующей рецептуры существует и ряд недостатков:

1. Возможность образования взвесей и выпадения осадков при превышении предела растворимости ацетатов свинца и висмута в водных растворах (порядка 22 г/дм<sup>3</sup> при температуре 50 °C).

- 2. Возможность образования взвесей и осадка труднорастворимых карбонатов свинца и висмута, в случае поступления углекислого газа в дезактивирующий раствор из окружающей среды. В связи с этим, в способе [5] дезактивацию предложено проводить в герметичной емкости, заполненной инертным газом, что ведет к удорожанию и усложнению технологического процесса.
- 3. Необходимость переработки значительных объемов концентрированных растворов пероксида водорода, уксусной кислоты и ацетатов свинца и висмута.

При дезактивации рецептурами на основе органических растворителей процесс очистки и дезактивации оборудования проводят при температуре 135-145 °C (выше температуры перехода свинцово-висмутового сплава в жидкое состояние) и атмосферном давлении в дезактивирующих растворах на основе высококипящих, водорастворимых органических жидкостей, имеющих температуры кипения более 125 °C, например, глицерина, содержащих химически активные добавки, например, аммонийную соль уксусной кислоты (0.5-10.0 % по массе) и нитрит натрия (0.5-10.0 % по массе) [8].

Фактически при данном подходе для растворения сплава применяются те же химические превращения, что и при использовании водных растворов: сплав первоначально окисляют до оксидов (нитритом натрия), а затем переводят в ацетатную форму. Отличием является применение высокотемпературного растворителя, которое позволяет проводить процесс при температуре выше температуры плавления сплава, что увеличивает эффективность его перевода с поверхности в дезактивирующий раствор и позволяет значительно снизить концентрации химически активных веществ.

Емкость глицериновых растворов по оксиду свинца при концентрации ацетата аммония 10% массовых составляет  $220\ г/дм^3$ . Скорость коррозии нержавеющей стали в дезактивирующем растворе  $\le 0.001\ r/(m^2 \cdot q)$ . Коэффициент дезактивации поверхности не ниже  $50\ [8]$ .

К недостаткам данного способа можно отнести:

- 1. Значительные энергозатраты при нагревании раствора до рабочих температур.
- 2. Необходимость переработки радиоактивных глицериновых растворов.
- 3. Недостаточная изученность эффективности данной рецептуры для растворения топливной композиции в случае ее присутствия на поверхности дезактивируемого оборудования.

Для выбора и обоснования способа дезактивация оборудования РУ с СВТ необходимо

- экспериментально подтвердить коррозионную агрессивность и эффективность (в том числе применительно к растворению оксидов урана) существующих дезактивационных рецептур;
- провести сравнение технологических и экономических аспектов применения рецептур на основании водных и органических растворителей;
- рассмотреть технологии переработки высококонцентрационных водных и органических ЖРО.

В связи с этим, авторами проведены исследования по использованию для дезактивации оборудования реакторных установок (РУ) с СВТ водных растворов кислот, для которых характерна высокая растворимость солей свинца и висмута, а именно: уксусной, азотной и тетрафторборной кислотой [7]. Эффективность использования данных растворов изучена применительно к растворению основных видов загрязнений [8, 9], которые можно ожидать на

поверхности оборудования ЯЭУ с СВТ: самого эвтектического сплава, оксида свинца, магнетита, диоксида урана.

### Методика проведения лабораторных экспериментов

В ходе проведенных лабораторных экспериментов выполнены исследования процессов растворения имитаторов загрязнений в водных растворах следующего химического состава (или рецептур):

- 10 % азотной кислоты;
- 30 % азотной кислоты;
- 10 % азотной кислоты и 2 % пероксида водорода;
- 10 % уксусной кислоты;
- 30 % уксусной кислоты;
- 10 % уксусной кислоты и 2 % пероксида водорода;
- 5 % тетрафторборной кислоты;
- 10 % тетрафторборной кислоты;
- 10 % тетрафторборной кислоты и 2 % пероксида водорода.

В качестве объектов исследования выбраны имитаторы материалов, моделирующие основные загрязнения, которые можно ожидать на поверхности конструкционных материалов ЯЭУ с СВТ, и требующие удаления или очистки (дезактивации):

- свинцово-висмутовый эвтектический сплав;
- оксид свинца;
- природный магнетит;
- диоксид урана;
- образцы нержавеющей стали марки X18H10T, загрязненные СВТ.

Загрязнение поверхности оборудования эвтектическим сплавом формируется за счет кристаллизации СВТ в результате его неполного дренирования. Оксид свинца образуется при окислении теплоносителя и составляет внешнюю часть оксидной пленки на поверхности конструкционных материалов. Магнетит формируется за счет окисления конструкционных материалов и является основой внутреннего слоя защитной оксидной пленки. Загрязнение поверхностей соединениями урана происходит в случае разгерметизации активной зоны.

Помимо исследования эффективности растворения отдельных видов загрязнений в качестве объекта дезактивации также использовали образцы конструкционных материалов, поверхности которых были загрязнены СВТ. Помимо эффективности растворения загрязнений на данных образцах проверяют повреждаемость конструкционных материалов при действии дезактивирующих рецептур.

#### Загрязнение конструкционных материалов сплавом СВТ

С образцов конструкционных материалов (сталь X18H10T) размером  $60\times20\times2$  мм предварительно удаляли коррозионные отложения путем их обработки в растворе щавелевой кислоты и пероксида водорода (концентрация 2 и 1 г/дм³, соответственно) при комнатной температуре в течение 0.5 часа. Образцы обезжиривали этиловым спиртом и взвешивали.

Подготовленные таким образом образцы примерно на  $^{3}\!4$  их длины опускали в ванну с предварительно расплавленным и разогретым до температуры 300 °C CBT. Ванну с CBT и образцами помещали в муфель и продолжали нагрев в течение 6 часов.

По окончании выдержки образцы извлекали из ванны, охлаждали выдержкой на воздухе при комнатной температуре до постоянного веса, после чего взвешивали. Часть образцов передавали на металлографические исследования для определения их исходного состояния, остальные использовали для испытания в дезактивирующих рецептурах.

## Исследование растворимости имитаторов загрязнений в водных растворах

Объект исследования в виде имитатора загрязнений (навеска СВТ в виде стружки, порошков оксида свинца PbO, магнетита  $\mathrm{Fe_3O_4}$  массой по  $10~\mathrm{r}$ , двуокиси урана  $\mathrm{UO_2}$  массой  $5~\mathrm{r}$  или образец конструкционного материала, загрязненный СВТ) помещали в коническую плоскодонную колбу объёмом  $250~\mathrm{m}$ л. В колбу заливали  $200~\mathrm{m}$ л (для двуокиси урана  $100~\mathrm{m}$ л) водных дезактивирующих растворов (состав которых, представлен выше), помещали в сушильный шкаф и производили выдержку при комнатной температуре в течение до  $24~\mathrm{u}$ . Через  $2, 4, 6, 24~\mathrm{u}$  после начала эксперимента отбирали пробы жидкой фазы объемом  $10~\mathrm{cm^3}$ , которые передавали на атомно-эмиссионный анализ для определения содержания в нем свинца, висмута и железа или на рентгенофлюоресцентный анализ на приборе «Флюорат-02-2» для определения содержания урана в растворах.

# Результаты экспериментальных исследований

Изменение концентрации железа в исследуемых растворах при растворении магнетита при комнатной температуре в растворах уксусной, азотной и тетрафторборной кислот без добавки и с добавкой перекиси водорода представлено на рис. 1–3.

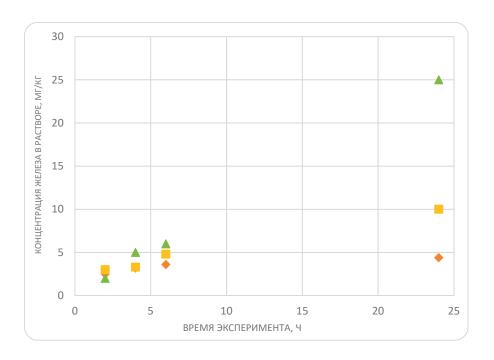


Рис. 1. Растворение магнетита в растворах уксусной кислоты:

- ◆ 10 % уксусная кислота;
- − 30 % уксусная кислота;
- 10 % уксусная кислота и 2 % пероксида водорода.

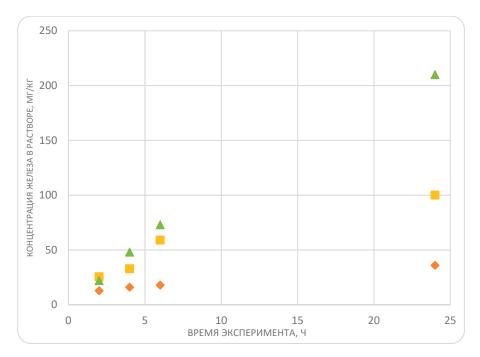


Рис. 2. Растворение магнетита в растворах азотной кислоты:

- ◆ − 10 % азотная кислота;
- - 30 % азотная кислота;
- ▲ 10 % азотная кислота и 2 % пероксид водорода.

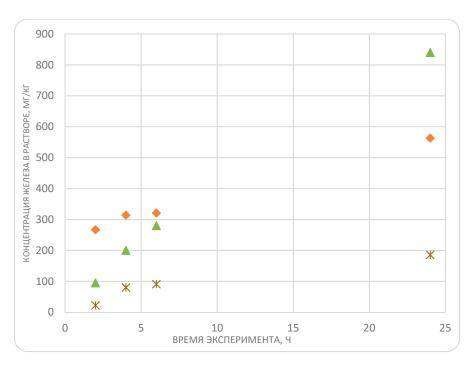


Рис. 3. Растворение магнетита в растворах тетрафторборной кислоты:

- ◆ 10 % тетрафторборная кислота;
- X 5% тетрафторборная кислота;
- ▲ 10 % тетрафторборная кислота и 2 % пероксид водорода.

Анализируя представленные на рис. 1–3 данные, можно сделать следующие выводы:

- 1. Скорость растворения магнетита в растворах уксусной кислоты имеет низкое значение, даже в присутствии  $H_2O_2$  не более 1 мкг/(кг·ч).
- 2. Скорость растворения магнетита в растворах азотной кислоты в 8–10 раз выше, чем в растворах уксусной кислоты с аналогичной концентрацией.
- 3. Добавление  $H_2O_2$  в количестве 2 % по массе к раствору азотной кислоты приводит к увеличению скорости растворения магнетита примерно в 5 раз.
- 4. Скорость растворения магнетита в растворе тетрафторборной кислоты без добавления пероксида водорода в 2.5 раза выше, чем в растворе с той же концентрацией азотной кислоты с добавлением H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>.
- 5. Добавление пероксида водорода в количестве 2 % по массе к раствору тетрафторборной кислоты приводит к росту скорости растворения магнетита примерно в 1.5 раза.

Изменение концентрации свинца и висмута в исследуемых растворах при растворении СВТ при комнатной температуре в растворах уксусной, азотной и тетрафторборной кислот без добавки и с добавкой перекиси водорода представлено на рис. 4–6.

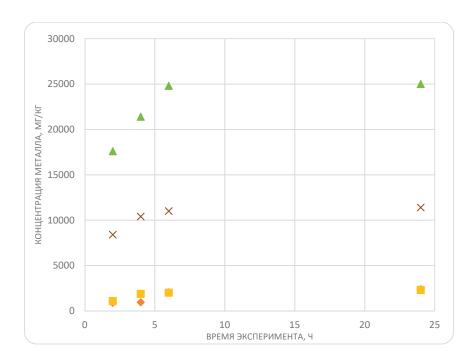


Рис. 4. Растворение СВТ в растворах уксусной кислоты:

- ◆ свинец в 10 % уксусной кислоте;
- свинец в 30 % уксусной кислоте;
- ▲ свинец в 10 % уксусной кислоте и 2 % пероксида водорода;
- Х − висмут в 10 % уксусной кислоте и 2 % пероксида водорода.

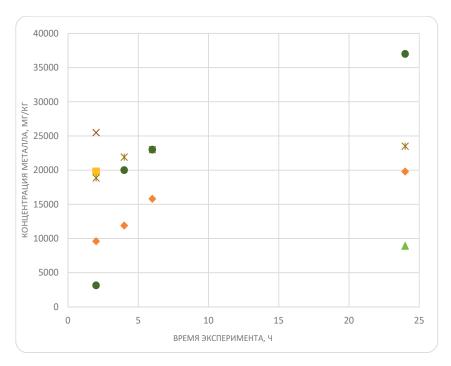


Рис. 5. Растворение СВТ в растворах азотной кислоты:

- ◆ свинец в 10 % азотной кислоте;
- свинец в 30 % азотной кислоте;
- Ж свинец в 10% азотной кислоте и 2 % пероксида водорода;
- ▲ висмут в 10 % азотной кислоте;
- × висмут в 30 % азотной кислоте;
- висмут в 10 % азотной кислоте и 2 % пероксида водорода.

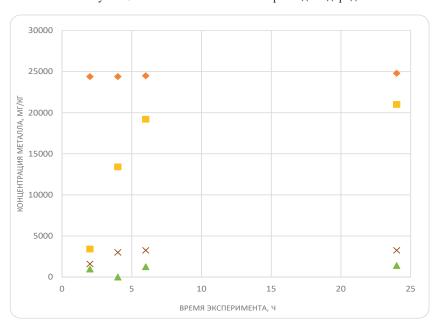


Рис. 6. Растворение СВТ в растворах тетрафторборной кислоты:

- ▲ свинец в 5 % тетрафторборной кислоте;
- × свинец в 10 % тетрафторборной кислоте;
- ◆ свинец в 10 % тетрафторборной кислоте и 2 % пероксида водорода;
- висмут в 10 % тетрафторборной кислоте и 2 % пероксида водорода.

Анализируя представленные на рис. 4-6 данные, можно сделать следующие выводы:

- 1. СВТ эффективно растворяется в уксусной кислоте только в присутствии пероксида водорода. При добавлении 2 %  ${\rm H_2O_2}$  свинец из СВТ полностью растворяется в 10 % растворе уксусной кислоты за 6 ч, после чего за оставшиеся 18 ч эксперимента в раствор переходит примерно 50 % висмута.
- 2. СВТ эффективно растворяется в растворах азотной кислоты. Полное растворение навески в растворе 10 % азотной кислоты и 2 % пероксида водорода происходит за 24 ч., в 30 % азотной кислоте за 2 ч.
- 3. Навеска СВТ полностью растворяется в растворе 10 % тетрафторборной кислоты в сочетании с 2 % пероксида водорода примерно за 6-8 часов.
- 4. Во всех случаях, кроме раствора 30 % азотной кислоты, навеска оксида свинца растворилась полностью. Время, за которое произошло полное растворение навески свинца для каждого исследуемого раствора, приведено в табл. 1.
- 5. В случае 30 % азотной кислоты за первые 2 часа эксперимента в раствор перешло порядка 50 % навески оксида свинца, после чего растворение прекратилось.

 Таблица 1

 Время растворения навески оксида свинца

Раствор	Время растворения, ч		
10 % азотная кислота	2		
10 % азотная кислота и 2 % пероксида водорода	24		
10 % уксусная кислота	4		
30 % уксусная кислота	2		
10 % уксусная кислота и 2 % пероксида водорода	2		
5 % тетрафторборная кислота	4		
10 % тетрафторборная кислота	2		
10 % тетрафторборная кислота и 2 % пероксида водорода	2		
10 % азотная кислота	2		

В табл. 2 приведены значения эффективности растворения навески диоксида урана в дезактивирующих растворах при комнатной температуре за 24 часа.

 Таблица 2

 Эффективность растворения навески диоксида урана

Раствор	Эффективность растворения, %
10 % азотная кислота	100
30 % азотная кислота	100
10 % азотная кислота и 2 % пероксида водорода	10
10 % уксусная кислота	6

Раствор	Эффективность растворения, %		
30 % уксусная кислота	8		
10 % уксусная кислота и 2 % пероксида водорода	1		
5 % тетрафторборная кислота	20		
10 % тетрафторборная кислота	30		
10 % тетрафторборная кислота и 2 % пероксида водорода	12		

Из приведенных в табл. 2 результатов можно сделать следующие выводы об эффективности растворения навески из диоксида урана в исследуемых растворах:

- 1. Навеска диоксида урана полностью растворяется только в растворах азотной кислоты без добавления пероксида водорода. В 10 %-м растворе азотной кислоты растворение происходит примерно за 6 часов, в 30 %-м менее чем за 2 часа.
- 2. Эффективность растворения диоксида урана в растворах уксусной кислоты без добавления пероксида водорода не превышает 8 %.
- 3. Навеска диоксида урана растворяется в растворах тетрафторборной кислоты без добавления пероксида водорода эффективнее, чем в растворах уксусной кислоты, однако абсолютное значение параметра не превышает 30 %.
- 4. Низкое значение эффективности растворения диоксида урана в растворах уксусной, тетрафторборной и азотной кислот с добавлением пероксида водорода объясняется выпадением вторичного светло-желтого осадка пероксида урана.

На рис. 7 представлен внешний вид образцов стали X18H10T после выдержки в течение 50 ч в расплавленном СВТ при температуре 375 °C при доступе воздуха.



a



б

Рис. 7. Внешний вид образцов стали X18H10T после выдержки в расплаве СВТ: а – сторона один, б – сторона два

Как видно из рис. 7, после выдержки в СВТ все образцы стали покрыты достаточно равномерной коркой застывшего сплава примерно на половину своей длины. Части поверхности образцов, не контактировавшие с СВТ, покрыты желтой оксидной пленкой.

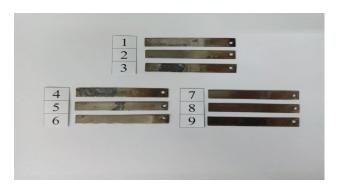
Изменение массы образцов после выдержки в СВТ и в дезактивирующих растворах представлено в табл. 3.

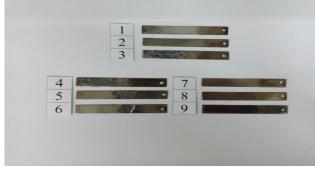
 Таблица 3

 Изменение массы образцов стали после выдержки в СВТс последующей выдержкой в дезактивирующих растворах

	Исходная Дезактивирующий масса, г раствор	Изменение массы образца относительно исходной, г					
Номер образца			После выдержки в СВТ	После выдержки в дезактивирующем растворе, в течение			
				2 часов	4 часов	6 часов	24 часов
1	4.6316	10 % HNO <sub>3</sub>	0.3230	0.2275	0.0992	0.0992	0.0992
2	4.5738	30 % HNO <sub>3</sub>	0.4156	-0.0137	-0.0138	-0.0138	-0.0138
3	4.4829	10 % CH <sub>3</sub> COOH	0.7924	0.7088	0.6502	0.6134	0.3103
4	4.5896	30 % CH <sub>3</sub> COOH	0.3736	0.2576	0.2361	0.2088	0.1534
5	4.7592	5 % HBF <sub>4</sub>	0.0820	-0.0448	-0.1410	-0.1653	-0.2795
6	4.7943	10 % HBF <sub>4</sub>	0.0578	-0.1661	-0.2138	-0.3358	-0.4289
7	4.7329	10 % HNO <sub>3</sub> +2 % H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	0.4101	-0.1015	-0.1011	-0.1015	-0.1017
8	4.5603	10 % CH <sub>3</sub> COOH+2 % H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	0.3661	0.0138	0.0138	0.0138	0.0136
9	4.7280	10 % HBF <sub>4</sub> +2 % H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	0.2420	-0.2252	-0.2315	-0.2358	-0.2451

Из представленных в табл. 3 данных видно, что в среднем прирост массы образцов составляет порядка  $25-50~\rm Mr/cm^2$  поверхности образца, контактировавшей с СВТ. Данные значения достаточно хорошо согласуются с приведенным в литературе максимальным уровнем загрязнения металлических поверхностей СВТ –  $40~\rm Mr/cm^2$  [9]. При этом следует отметить, что не весь прирост массы образцов определяется загрязнением СВТ, увеличение массы также происходит за счет формирования оксидной пленки.





а

Рис. 8. Внешний вид загрязненных СВТ образцов после выдержки в дезактивирующих растворах в течение 24 часов: а – сторона один, б – сторона два

Из представленных в табл. 3 и на рис. 8 данных можно сделать следующие выводы:

- 1. Застывший СВТ был удален с поверхности образцов 1, 2, 7, 8, 9 (в растворах азотной кислоты и азотной, уксусной и тетрафторборной кислот с добавлением пероксида водорода) за 6 часов эксперимента.
- 2. Для образцов 5, 6, 7, 9 (растворы тетрафторборной кислоты и азотной кислоты с пероксидом водорода) наблюдается заметная коррозия основного материала,

- причем для образцов 5, 6 (растворы тетрафторборной кислоты без добавления пероксида водорода) коррозия основного материала наблюдается при частичном сохранении загрязнения СВТ.
- 3. Отклонение массы образцов 1, 2, 8 (растворы азотной кислоты и уксусной кислоты с добавлением пероксида водорода) от начального значения, по-видимому, объясняются процессами формирования и удаления оксидной пленки.

Следует отметить, что данные, полученные при отмывке застывшего СВТ с поверхности образцов стали, хорошо согласуются с результатами растворения в дезактивирующих растворах стружки сплава.

# Обсуждение результатов

Из полученных экспериментальных данных видно, что растворы уксусной кислоты без добавления пероксида водорода не растворяют СВТ. При добавлении пероксида водорода растворы уксусной кислоты способны эффективно удалять загрязнение свинцово-висмутовым сплавом с металлических поверхностей, не повреждая оксидные пленки на конструкционных материалах. Данный факт делает растворы уксусной кислоты и пероксида водорода оптимальным выбором для проведения периодической отмывки съемного оборудования первого контура РУ с СВТ или оборудования, контактировавшего со сплавом.

Полученные результаты также свидетельствуют, что концентрации уксусной кислоты 10 % по массе и пероксида водорода 2 % по массе являются достаточными для удаления загрязнений, как с точки зрения обеспечения приемлемой скорости очистки, так и с точки зрения емкости раствора по загрязнениям. Показано, что в 1 см³ раствора 10 % уксусной кислоты и 2 % пероксида водорода способно растворяться не менее 37 мг СВТ. При максимальном уровне загрязнения СВТ 40–50 мг/см² для отмывки 1 см² поверхности потребуется порядка 2 см³ дезактивирующего раствора, что выглядит вполне приемлемым.

Растворы тетрафторборной кислоты эффективно растворяют СВТ только при добавлении пероксида водорода. При этом, в отличии от уксусной, тетрафторборная кислота растворяет также и оксидную пленку и даже верхний слой самого конструкционного материала (то есть при ее применении происходит процесс травления материала). Таким образом, раствор 10 % тетрафторборной кислоты и 2 % пероксида водорода обеспечивает эффективную дезактивацию оборудования, однако практически исключает его дальнейшее использование. Данное обстоятельство позволяет применять раствор 10 % тетрафторборной кислоты и 2 % пероксида водорода для постэксплуатационной дезактивации оборудования, передаваемого в твердые радиоактивные отходы (ТРО).

Растворы азотной кислоты способны растворять СВТ, как при добавлении пероксида водорода, так и без него. При этом, при взаимодействии раствора азотной кислоты и пероксида водорода с диоксидом урана происходит выпадение вторичного светло-желтого осадка пероксида урана по реакциям [10]:

$$\begin{aligned} &\mathrm{UO_2} + 4\mathrm{HNO_3} \rightarrow \mathrm{UO_2(NO_3)_2} + 2\mathrm{NO_2}\uparrow + 2\mathrm{H_2}\uparrow \\ &\mathrm{UO_2(NO_3)_2} + \mathrm{H_2O_2} + 2\mathrm{H_2O} \rightarrow \mathrm{UO_4} \cdot 2\mathrm{H_2O} \downarrow + 2\mathrm{HNO_3} \end{aligned}$$

В свою очередь, раствор 30 % азотной кислоты пассивирует поверхность оксида свинца (II) за счет формирования нитрата свинца (II) плохо растворимого в концентрированной азотной кислоте, что снижает эффективность раствора по отношению к удалению шлаков.

В тоже время 10 % раствор азотной кислоты способен растворять магнетит, СВТ, оксиды свинца и урана, и при этом не приводит к значительной потере массы образца конструкционного

материала, что делает данный раствор оптимальным для внутриконтурной дезактивации РУ с СВТ. Для повышения скорости растворения СВТ и магнетита в растворе следует рассмотреть возможность проведения процесса дезактивации при повышенной температуре.

Важным вопросом выполнения внутриконтурной дезактивации РУ с СВТ является обеспечение достаточной емкости дезактивирующего раствора по загрязнениям. При ее недостаточном уровне в контуре будет происходить образование вторичного осадка, что может вызывать «зарастание» отдельных трубопроводов. Для определения необходимой емкости раствора следует учитывать, что в контуре будет оставаться не только застывшая на поверхностях корка сплава, но и сам теплоноситель в застойных зонах. В результате, возможность проведения дезактивации будет определяться эффективностью дренажа теплоносителя из контура. Суммарная емкость вводимого в контур раствора должна на 20–30 % превышать количество оставшегося в контуре сплава, определяемое как разница между массой первоначально загруженного и слитого в ходе дренажа теплоносителя.

Следует отметить, что внутриконтурная дезактивация РУ с СВТ — сложный и опасный процесс, который требует разработки и использования нештатного оборудования (в частности насосов для обеспечения циркуляции дезактивирующего раствора), обеспечения постдезактивационной отмывки и пассивации поверхностей оборудования. Проведение внутриконтурной дезактивации оправдано только в случае наличия на внутренних поверхностях оборудования и трубопроводов первого контура значительного количества фрагментов топлива, не позволяющего эффективно проводить дальнейшую эксплуатацию РУ.

#### Заключение

На основании результатов проведенного исследования можно рекомендовать к применению следующие дезактивирующие рецептуры:

- 1. Для периодической отмывки оборудования от застывшего СВТ (выемной части главного циркуляционного насоса, корпусов фильтров и массообменников, перегрузочного оборудование первого контура) без повреждения защитной оксидной пленки раствор 10 % уксусной кислоты и 2 % пероксида водорода.
- 2. Для постэксплуатационной химической дезактивации с травлением поверхности съемного оборудования, передаваемого в твёрдые радиоактивные отходы, раствор 10 % тетрафторборной кислоты и 2 % пероксида водорода.
- 3. Для внутриконтурной химической дезактивации в случае разгерметизации оболочек твэлов с поступлением значительного количества топлива на поверхности оборудования раствор 10 % азотной кислоты при повышенной температуре.

В качестве направления дальнейших исследований можно рекомендовать изучение скорости коррозионных повреждений в выбранных дезактивирующих растворах всех основных конструкционных материалов первого контура реакторных установок со свинцововисмутовым теплоносителем.

### **Conclusions**

Based on results of the above-described study, the following decontamination compositions can be recommended for use:

1. For periodic removal of solidified lead-bismuth eutectic (LBE) from the surfaces of reactor plant equipment (rotating assembly of the reactor coolant pump, housings of filters and mass transfer apparatus, refueling equipment) without damage of protective oxide film – 10 % acetic acid and 2 % hydrogen peroxide solution.

- 2. For post-operation chemical decontamination with etching of the surfaces of removable equipment to be disposed as a solid radioactive waste 10 % tetrafluoroboric acid and hydrogen peroxide solution.
- 3. For in-line chemical decontamination in case of fuel cladding failure and subsequent arrival of large amounts of fuel to the equipment surfaces 10% nitric acid solution under an elevated temperature.

Studies on the corrosion damage rate of the primary circuit structural materials in the chosen solutions at LBE-cooled reactors can be recommended as directions for future research.

# Литература

- 1. *Федорович Е.Д.* Аналитический обзор опыта эксплуатации и современных разработок ядерных энергетических установок средней и малой мощности с жидкометаллическим теплоносителем. Часть 2 (Современные разработки) / Е.Д. Федорович, И.И. Курдюков // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок. 2020. Вып. 3(21). С. 9–31.
- 2. Совершенствование режимов и регламентов химической технологии свинцово-висмутового теплоносителя ядерной энергетической установки стенда КМ-1 / А.К. Андрианов, В.Я. Бредихин, Л.Н. Москвин, О.Г. Панов // Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях: тезисы докладов. Обнинск: ГНЦ РФ ФЭИ им. А.И. Лейпунского, 2003.
- 3. *Ампелогова Н.И.* Дезактивация в ядерной энергетике / Н.И. Ампелогова, Ю.М. Симановский, А.А. Трапезников. М.: Энергоатомиздат, 1982. С. 256.
- 4. Направления и задачи разработки технологий отмывки и дезактивации оборудования реакторов с ТЖМТ / С.Н. Скоморохова, Н.Г. Богданович, П.Н. Мартынов [и др.] // Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях (ТЖМТ-2013): сборник трудов конференции; в 2 т., Т. 1. Обнинск: ГНЦ РФ ФЭИ им. А.И. Лейпунского, 2013.
- 5. Патент РФ. Ru 2459 297 C1. Андрианов А.К. Способ очистки и дезактивации внутриконтурного оборудования реакторной установки с жидкометаллическим свинцово-висмутовым теплоносителем / А.К. Андрианов, В.В. Кривобоков, Л.Н. Москвин. 2011. 9 с.
- 6. Experimental Investigation on the Cleaning Effect and Influence Rule of Hydrogen Peroxide–Acetic Acid on Lead-Bismuth Eutetic Alloy / Xi Huang, Bo Pang, Xuelong Zhou, Yuan Yin. // Energy Res., 28 September 2021, Sec. Nuclear Energy. 2021. Vol. 9 https://doi.org/10.3389/fenrg.2021.735199.
- 7. Новый справочник химика и технолога. Химическое равновесие. Свойства растворов / ред. С.А. Симанова. СПб: НПО «Профессионал», 2004. 998 с.
- 8. *Heinzel A*. Corrosion behavior of austenitic steels in liquid lead bismuth containing 10<sup>-6</sup> wt% and 10<sup>-8</sup> wt % oxygen at 400–500 °C / A. Heinzel, A. Weisenburger, G. Muller // Journal of Nuclear Materials. 2014. Vol. 448. PP. 163–171.
- 9. Corrosion scales on various steels after exposure to liquid lead-bismuth eutectic / K. Lambrinou, V. Koch, G. Coen, J. Van den Bosch, C. Schroer // Journal of Nuclear Materials. 2014. Vol. 450. PP. 244–255.
- 10. Кац Дж. Химия урана. 1 т. / Дж. Кац, Е. Рабинович. М.: Издательство иностранной литературы, 1954. 490 с.

УДК 621.039.526, 621.039.586, 621.039.577-182.3 DOI: 10.52069/2414-5726 2023 3 33 66

# Анализ фазовых равновесий в системе материалов активной зоны реакторов с ТЖМТ и нитридным топливом

<sup>1,2</sup>А.В. Тимчук, <sup>1,3</sup>М.Е. Кургузкина, <sup>2,4</sup>А.А. Андронова, <sup>1,2</sup>Е.Б. Шуваева, <sup>1,2,3</sup>В.И. Альмяшев

<sup>1</sup> ФГАОУ ВО «Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет им. В.И. Ульянова (Ленина) «ЛЭТИ», Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова», г. Сосновый Бор Ленинградской области, Россия <sup>3</sup> ФГБУН «Институт химии силикатов им. И.В. Гребенщикова РАН», Санкт-Петербург, Россия <sup>4</sup> ФГБОУ ВО «Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет)», Санкт-Петербург, Россия

#### Аннотация

В статье приведены данные о фазовых равновесиях в многокомпонентной системе Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-U-N, составляющей основу материалов, используемых в активной зоне перспективных реакторов нового поколения с тяжелым жидкометаллическим теплоносителем (ТЖМТ). Основными материалами активной зоны таких реакторов являются: нитридное топливо, стальные оболочки твэл, свинцовый или свинцововисмутовый теплоноситель.

На основе приведенных данных о фазовых равновесиях выполнен анализ процессов, протекающих в условиях тяжелых аварий на реакторах, использующих указанные материалы, рассмотрены границы их температурной устойчивости. Обсуждаются пробелы и противоречия в имеющейся информации по данной тематике.

**Ключевые слова:** фазовые равновесия, тяжелый жидкометаллический теплоноситель, сталь оболочек твэлов, нитридное топливо, тяжелые аварии.

# Analysis of phase equilibria in the system of core materials of reactors with HLMC and nitride fuel

<sup>1,2</sup>A.V. Timchuk, <sup>1,3</sup>M.E. Kurguzkina, <sup>2,4</sup>A.A. Andronova, <sup>1,2</sup>E.B. Shuvaeva, <sup>1,2,3</sup>V.I. Almjashev

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

#### Abstract

The article presents data on phase equilibria in the multicomponent Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-U-N system that is a base for materials used in the cores of new generation advanced nuclear reactors with a heavy liquid metal coolant (HLMC). The main materials in the cores of such reactors are nitride fuel, steel cladding of fuel elements, lead or lead-bismuth coolant.

Data on the phase equilibria employed to analyze the processes occurring under severe accident conditions in reactors where these materials are used. Their temperature stability limits are examined. Gaps and inconsistency in the available information are discussed.

**Key words**: phase equilibria, heavy liquid metal coolant, fuel cladding steel, nitride fuel, severe accident.

## Ввеление

Прогнозирование сценариев тяжелых аварий на ядерных энергетических установках (ЯЭУ) требует создания расчетных моделей и экспериментального исследования физико-химических процессов, протекающих в активной зоне ядерного реактора [1, 2]. Проекты реакторных установок IV и V поколения со свинцовым и свинцово-висмутовым (СВТ) теплоносителями предполагают использование новых видов тепловыделяющих элементов [3]. Например, в реакторе БРЕСТ-ОД-300 будут использованы твэлы с мононитридом урана-плутония в качестве ядерного топлива и ферритно-мартенситной сталью в качестве материала оболочки [4, 5]. Свойства и взаимодействие этих материалов изучены в ограниченном диапазоне температур. В условиях запроектных тяжелых аварий возможен значительный перегрев активной зоны вплоть до деградации и плавления твэлов. Для таких сценариев практически отсутствуют экспериментальные данные о характере взаимодействия указанных материалов.

Анализ фазовых равновесий в системах, отвечающих за взаимодействие материалов активной зоны ядерного реактора, дает возможность определения температурных пределов устойчивости конструкционных материалов и прогнозирования сценариев гипотетической тяжелой аварии, что необходимо для обоснования безопасности реакторной установки [6]. Инструментом описания фазовых равновесий являются фазовые диаграммы.

Многокомпонентная система «тяжелый жидкометаллический теплоноситель — сталь оболочки твэл — нитридное топливо» (Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-U-N) может быть разделена на ряд наиболее важных с точки зрения высокотемпературного взаимодействия подсистем. Системы Fe-Cr-Ni-Pb и Fe-Cr-Ni-Bi-Pb важны с точки зрения взаимодействия свинцового и свинцововисмутового теплоносителей со сталью оболочки твэлов. Системы Pb-U-N и Bi-Pb-U-N характеризуют температурные пороги устойчивости нитридного топлива при взаимодействии с ТЖМТ. Система Fe-Cr-Ni-U-N позволяет судить о совместимости стали оболочки твэлов с нитридным топливом. В статье дополнительное внимание уделяется металлической системе Fe-Cr-Ni-U, а также образованию нитридов в системе Fe-Cr-Ni-N. Ниже приведен анализ фазовых равновесий в указанных системах.

# Фазовые равновесия в системе «сталь-ТЖМТ»

#### Фазовые равновесия в системе Ві-Рь

Тройной диаграммы состояния для системы Bi-Fe-Pb до сих пор не построено. Анализ фазовых равновесий в данной системе сводится к рассмотрению бинарных систем Bi-Pb, которые хорошо изучены [7–9], и Bi-Fe, схожей с Fe-Pb [10]. Фазовая диаграмма Bi-Pb представлена на рис. 1 [9].

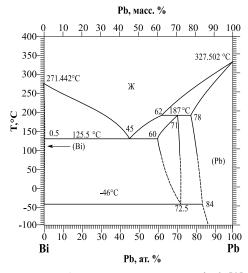


Рис. 1. Фазовая диаграмма Bi-Pb [8]

Эвтектическая реакция соответствует точке с содержанием 45 ат. % Pb при 125.5 °C. В системе также обнаружена перитектика при 187 °C и эвтектоидный распад при -46 °C. Растворимость Bi в Pb составляет от  $\sim$ 24 ат. % при 187 °C до  $\sim$ 16 ат. % при -46 °C [9]. В системе обнаружена  $\epsilon$ -фаза, образующаяся перитектически, и присутствует незначительная растворимость Pb в Bi [9].

# Фазовые равновесия в системе Cr-Fe-Ni

Бинарные фазовые равновесия в системе Cr-Fe-Ni детально описаны в различных источниках [7, 8, 11–13]. Фазовые диаграммы бинарных систем Cr-Fe, Cr-Ni и Fe-Ni представлены в [8].

Для системы Cr-Fe характерно наличие непрерывной серии твердых растворов на основе  $\alpha$ -(Cr, Fe) (о.ц.к.) и  $\gamma$ -Fe (г.ц.к.) с содержанием Cr до 11.9 ат. %, а также промежуточной  $\sigma$ -фазы, кристаллизующейся при 815–830 °C [7, 8, 11–13].

В системе Cr-Ni имеет место значительная растворимость компонентов друг в друге в виде твердых растворов на основе  $\alpha$ -Cr (о.ц.к.) и  $\gamma$ -Ni (г.ц.к.). Присутствуют эвтектика (1345 °C) и промежуточная фаза CrNi, ( $\gamma$ '), упорядоченно кристаллизующаяся при 590 °C [7, 8, 11, 14].

В системе Fe-Ni наблюдается непрерывный ряд твердых растворов на основе  $\gamma$ -Fe,Ni (г.ц.к.),  $\delta$ -Fe (о.ц.к.) (до 4.1 ат. % Ni) и  $\alpha$ -Fe (о.ц.к.) (до 5.8 ат. % Ni), а также фазы FeNi $_3$ , FeNi и Fe $_3$ Ni с широкими областями гомогенности, упорядоченно кристаллизующиеся в низкотемпературной области [7, 8, 11–13].

Детальный анализ и термодинамическое описание тройной системы Cr-Fe-Ni приведено во множестве работ [12, 14, 15–19]. На рис. 2 представлены наиболее важные области тройной фазовой диаграммы: проекция поверхности ликвидус (а), проекция поверхности солидус (б) и изотермический разрез при 1300 °C (в) [14]. На рис. 2 а отмечены две реакции трехфазного равновесия: перитектическая реакция (1) при 1518 °C, эвтектическая реакция (2) при 1345 °C.

$$\alpha - (\operatorname{Cr}_{1-x-y} \operatorname{Fe}_{x} \operatorname{Ni}_{y}) + \mathcal{K} \rightleftarrows \gamma - (\operatorname{Ni}_{1-x-y} \operatorname{Fe}_{x} \operatorname{Cr}_{y})$$

$$\tag{1}$$

$$\mathcal{K} \rightleftharpoons \alpha - (Cr_{1-x-y}Fe_xNi_y) + \gamma - (Ni_{1-x-y}Fe_xCr_y)$$
(2)

На тройных фазовых диаграммах отмечены температурные и концентрационные границы областей α- и γ-фаз. В качестве материалов оболочек твэл реакторов с ТЖМТ предполагаются стали ферритно-мартенситного и аустенитного класса. Так, содержание хрома и никеля в ферритно-мартенситной стали ЭП823, материала оболочек твэлов для реактора БРЕСТ-ОД-300 [20–22], составляет 10.0–12.0 масс. % и 0.5–0.8 масс. %, соответственно [23]. В аустенитной стали ЭК164, применяемой в качестве материала оболочки твэл реакторов типа БН, содержание хрома и никеля находится в диапазоне 15.0–16.0 масс. % и 18.0–19.5 масс. %, соответственно [24].

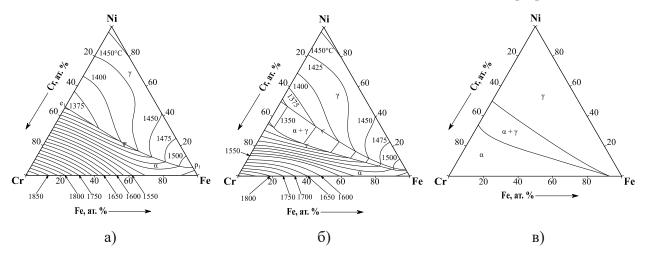


Рис. 2. Высокотемпературные области на тройной фазовой диаграмме Cr-Fe-Ni [14]: а) – проекция поверхности ликвидус; б) – проекция поверхности солидус; в) – изотермический разрез при 1300 °C

### Фазовые равновесия в системе Fe-Pb

Фазовые равновесия в системе Fe-Pb предоставляют базовую информацию для анализа высокотемпературного взаимодействия конструкционной стали со свинцовым теплоносителем при поддержании инертной атмосферы в активной зоне. Система не имеет промежуточных соединений и характеризуется широкой областью несмешиваемости металлов в жидком состоянии [7, 8, 11–13, 25]. Пределы растворимости компонентов друг в друге обобщены в [26], диаграмма состояния термодинамически оптимизирована в работе [27]. При 1535 °C в системе протекает монотектическая реакция (3) [7, 11–13, 26, 27].

$$\mathcal{K}_1 \leftrightarrows \delta \text{-Fe} + \mathcal{K}_2$$
 (3)

В работе [27] были рассчитаны критическая точка области несмешиваемости, составившая  $4004\,^{\circ}\mathrm{C}$  (49.6 ат. % Pb), а также растворимости компонентов системы Fe-Pb друг в друге в твердом состоянии в интервале температур  $1098-1298\,^{\circ}\mathrm{C}$ . Максимальная растворимость свинца в железе в твердом состоянии составила  $16.7\times10^{-6}$  ат. %, а железа в свинце -0.259 ат. %. Также авторы работы [27] по имеющимся экспериментальным данным рассчитали температуры монотектики (1536.5 °C) и эвтектики (327.5 °C) и оптимизировали фазовую диаграмму. Фазовая диаграмма Fe-Pb представлена на рис. 3 а [8, 15, 27].

# Фазовые равновесия в системе Cr-Pb

Система Cr-Pb схожа с системой Fe-Pb несмешиваемостью компонентов в жидком состоянии, отсутствием промежуточных соединений, крайне низкой растворимостью компонентов друг в друге и наличием инвариантных реакций, включая достоверно установленный тип монотектической реакции [7, 11, 28–30]. На рис. 3 б представлены диаграммы на основе исходных экспериментальных данных с заниженной температурой монотектики 1470 °C [29, 30], а также вариант диаграммы, рассчитанной в [31], с температурой монотектики 1735 °C. Тип инвариантной реакции при 327 °C также не определен и, предположительно, может быть эвтектикой [30].

В работе [31] температура критической точки области несмешиваемости составила 1913 °C. В [7, 11, 28, 30] на основе экспериментальных данных отмечается увеличение растворимости Сr в жидком Pb от 0.05 ат. % при 908 °C до 0.63 ат. % при 1210 °C.

# Фазовые равновесия в системе Ni-Pb

Подробное описание системы Ni-Pb приведено в большом количестве работ [7, 8, 11, 28, 29, 31–36]. Для данной системы характерно наличие более узкой области несмешиваемости в жидком состоянии, чем в системах Fe-Pb (рис. 3, а) и Bi-Fe (рис. 4 а), большей взаимной растворимости как в жидком, так и в твердом состоянии в виде твердых растворов никеля и свинца с г.ц.к.-решеткой, наличие двух инвариантных реакций (монотектической и эвтектической) и отсутствие стабильных промежуточных фаз [7, 8, 11, 28, 29, 32].

На рис. З в представлена фазовая диаграмма Ni-Pb из работы [34]. В работе [10] авторами получена функциональная зависимость для растворимости Ni в жидком Pb в диапазоне температур 325–644 °C. Температура монотектической реакции (4) составляет 1346 °C при концентрации Pb 12.9 ат. % [32, 34, 36]. Максимальная растворимость Pb в твердом Ni составляет 0.154 ат. % при температуре монотектики [36]. Эвтектическая реакция (5) проходит при 325 °C и концентрации Pb 99.6 ат. % [32, 34, 36]. Максимальная растворимость Ni в твердом Pb составляет около 0.023 ат. % при температуре эвтектики [35, 36]. В работах [35] и [36] авторы рассчитали критические точки области несмешиваемости как 1532 °C при 27.2 ат. % Pb [35] и 1509 °C при 26.8 ат. % Pb [36].

$$\mathcal{K}_{1} \rightleftarrows \mathcal{K}_{2} + \Gamma.II.K.-Ni$$
 (4)

$$\mathcal{H}_{\gamma} \rightleftarrows \Gamma.\Pi.\kappa.-Ni + \Gamma.\Pi.\kappa.-Pb$$
 (5)

Стабильных промежуточных фаз в системе Ni-Pb не обнаружено, за исключением метастабильной фазы NiPb, образующейся в низкотемпературной области [8].

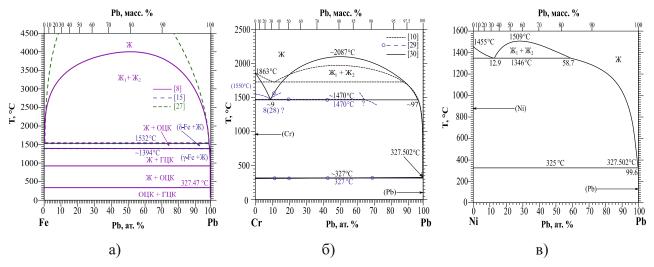


Рис. 3. Фазовые диаграммы систем: a) – Fe-Pb [8, 15, 27]; б) – Cr-Pb [10, 29, 30]; в) – Ni-Pb [34]

#### Фазовые равновесия в системе Ві-Fe

В системе Ві-Fе нет промежуточных соединений, а компоненты практически не смешиваются друг с другом в жидком состоянии, однако показывают крайне низкую взаимную растворимость в твердом состоянии, подобно системе Fe-Pb [11, 12, 28, 29, 37–39]. Растворимость Fe в жидком Ві изменяется 0.0012 ат. % при 400 °C до 0.047 ат. % при 700 °C [13]. Фазовая диаграмма системы Ві-Fe представлена на рис. 4 а [29, 38].

В работе [37] авторами выдвинуто экспериментально обоснованное предположение о наличии перитектической реакции (6) при температуре 271.5 °C, совпадающей с температурой плавления Ві, а также согласующейся с расчетной температурой перитектики. Также авторы рассчитали температуры трех инвариантных реакций в области, обогащенной железом: метатектических при 909.5 °C (7) и при 1392 °C (8), монотектической (9) при 1535 °C.

$$\mathcal{X}_{1} + \text{Fe} \leftrightarrows (\text{Bi})$$
 (6)

$$\gamma$$
-Fe  $\rightleftarrows \mathcal{K}_1 + \alpha$ -Fe (7)

$$\delta$$
-Fe  $\rightleftarrows \mathcal{K}_1 + \gamma$ -Fe (8)

$$\mathcal{K}_{2} = \mathcal{K}_{1} + \delta - \text{Fe} \tag{9}$$

В работе [31] авторы вывели уравнение пределов растворимости Fe в жидком Bi в диапазоне 272–900 °C на основе работы [37] и уравнение пределов растворимости Fe в жидком Pb в диапазоне 327–900 °C на основе работы [27].

# Фазовые равновесия в системе Ві-Ст

По имеющимся данным в системе Bi-Cr имеет место широкая область несмешиваемости, две инвариантные реакции и крайне невысокая растворимость хрома в жидком висмуте [7, 10, 11, 28, 29, 39, 40]. В работе [40] температура монотектической реакции (10) составляет 1553 °C и является заниженной, полученное содержание Cr при данной температуре ~ 9 ат. %. Тип второй инвариантной реакции (11) предположительно эвтектический, однако температура

реакции совпадает с температурой плавления Bi [40]. Экспериментальное исследование данной системы в особенности затрудненно тем, что температура кипения Bi лежит ниже температуры плавления Cr [29, 40].

$$\mathcal{K}_{1} \rightleftarrows (Cr) + \mathcal{K}_{2}$$
 (10)

$$\mathcal{K}_{\gamma} \rightleftarrows (Cr) + Bi$$
 (11)

На рис. 4 б представлена фазовая диаграмма по данным [10, 29, 40]. Авторы [10] оценили температуру монотектики как 1822 °С и критическую точку области несмешиваемости 3091 °С.

# Фазовые равновесия в системе Bi-Ni

Система Ві-Nі характерна небольшой растворимостью Ві в твердом Ni (г.ц.к.) [41], тремя инвариантными реакциями (двумя перитектическими и одной вырожденной эвтектической), а также наличием двух стабильных интерметаллических соединений: BiNi с гексагональной структурой NiAs-типа и узкой областью гомогенности (50–52 ат. % Bi) и стехиометрического Bi,Ni с орторомбической структурой CaLiSi,-типа [7, 11, 42–47].

Подробное термодинамическое описание системы и оптимизация фазовой диаграммы проведены в работах [43-46]. Два интерметаллических соединения образуются по перитектическим реакциям (12) при 654 °C и (13) при 471 °C [42–47]. Эвтектическая реакция (14) проходит при 271 °C и содержании 99.47 ат. % Ві [40, 42, 48]. В работе [10] пределы растворимости Nі в жидком Ві описаны температурными зависимостями в диапазоне 270–900 °C.

$$\mathcal{K} + \gamma$$
-(Ni) (г.ц.к.)  $\rightleftarrows$  BiNi (12)

$$\mathcal{K} + BiNi \rightleftarrows Bi_{3}Ni \tag{13}$$

$$\mathcal{K} \rightleftarrows Bi_3Ni + Bi$$
 (14)

На рис. 4 в представлена фазовая диаграмма Bi-Ni из работы [46].

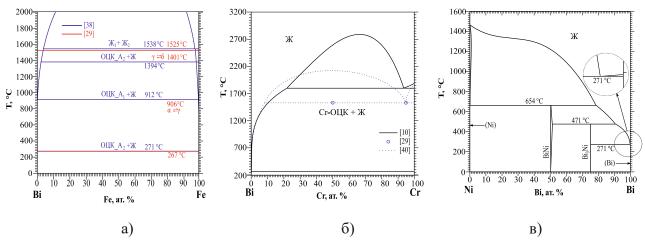


Рис. 4. Фазовые диаграммы систем: a) – Bi-Fe [29, 38]; б) – Bi-Cr [10, 29, 40]; в) – Bi-Ni [46]

#### Фазовые равновесия в системе Fe-Ni-Pb

В работе [36] авторы привели термодинамическое описание тройной системы Fe-Ni-Pb, получили экспериментальные данные о взаимной растворимости компонентов в жидком и твердом состоянии, полученные в равновесных условиях между фольгой состава  $Fe_{62}Ni_{38}$  и свинцом в диапазоне температур температурах 1010-1257 °C. Также в работе [36] представлены рассчитанные псевдобинарные фазовые диаграммы  $Fe_{62}Ni_{38}$ -Pb и (Ni/Pb)-Fe с отмеченными данными о взаимной растворимости компонентов.

На рис. 5 представлены рассчитанные изотермические разрезы при 1512 °C и 1553 °C с наложенными экспериментальными данными о растворимости компонентов системы Fe-Ni-Pb, хорошо согласующимися с расчетами. На изотермическом разрезе при температуре 1512 °C (рис. 5 а) отмечено изменение фазового состава с увеличением концентрации никеля по схеме (15):

$$\mathcal{K} + \delta - (Fe, Ni) \rightarrow \mathcal{K} + \delta - (Fe, Ni) + \gamma - (Fe, Ni, Pb) \rightarrow \mathcal{K} + \gamma - (Fe, Ni, Pb) \rightarrow \mathcal{K}_1 + \mathcal{K}_2 + \gamma - (Fe, Ni, Pb) \rightarrow \mathcal{K}_1 + \mathcal{K}_2 \rightarrow \mathcal{K}$$
15

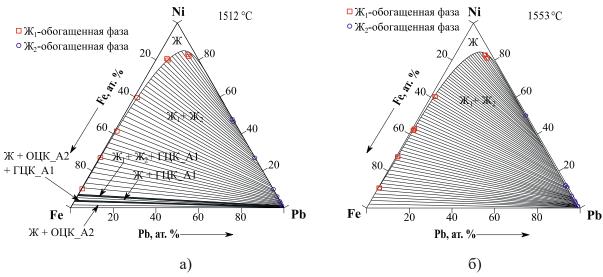


Рис. 5. Рассчитанные изотермические разрезы тройной фазовой диаграммы Fe-Ni-Pb: а) — при 1512 °C; б) — при 1553 °C [36]

# Фазовые равновесия в системе Bi-Ni-Pb

В работе [49] были получены экспериментальные данные при 100 и 300 °C в системе Ві-Ni-Pb и построены изотермические разрезы тройной фазовой диаграммы при данных температурах (рис. 6 а, б). На рис. 7 представлена рассчитанная авторами проекция поверхности ликвидує тройной фазовой диаграммы Ві-Ni-Pb.

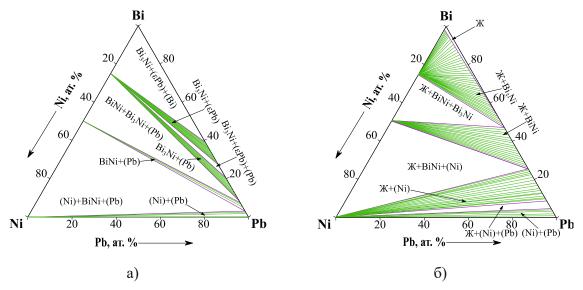


Рис. 6. Изотермические разрезы тройной фазовой диаграммы Bi-Ni-Pb: а) — при 100 °C; б) — при 300 °C [49]

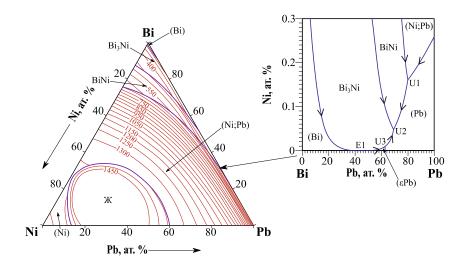


Рис. 7. Рассчитанная проекция поверхности ликвидус тройной фазовой диаграммы Bi-Ni-Pb [49]

#### Выводы о растворимости стали в ТЖМТ

Растворимость железа, хрома и никеля в жидком свинце, висмуте и свинцово-висмутовой эвтектике была исследована в диапазоне температур от ~350 °C до ~1300 °C [50]. В [50] подробно представлены экспериментально определенные пределы растворимости компонентов стали в ТЖМТ и их компонентах. Максимальная растворимость Fe и Cr в них на порядок ниже, чем у Ni. Этот факт, по-видимому, связан с образованием интерметаллических соединений в системе Bi-Ni и в целом большей растворимостью никеля в расплавах свинца и висмута.

Температуры кипения свинца (1748 °C), висмута (1558 °C) и свинцово-висмутовой эвтектики (1654 °C), а также высокое давление насыщенного пара ограничивают экспериментальные исследования фазовых равновесий в области высоких температур [50].

Таким образом, можно сделать вывод, что в равновесных условиях, без учета оксидного слоя на поверхности стали, деградация твэлов в потоке свинцового и свинцово-висмутового теплоносителей становится возможной уже при ~350 °C и при повышении температуры ее скорость будет возрастать на порядки. На практике температурные пороги стабильности стали, имеющей оксидный слой, оказываются выше. В работе [51] авторы установили, что активная межзеренная диффузия свинца в стали начинается в интервале температур 1370–1425 °C при выдержке в течение 30 мин. В работе [52] авторами было показано, что взаимодействие стали твэла с расплавом свинцово-висмутовой эвтектики начинается на уровне 1200 °C, а после выдержки в течение 60 мин при температуре 1320 °C образец стали практически полностью растворяется.

### Фазовые равновесия в ураносодержащих системах

#### $\Phi$ азовые равновесия в системе U(Pu)-N

В системе U-N образуется ряд нестехиометрических нитридов урана: мононитрид UN с г.ц.к.-решеткой типа NaCl, сесквинитриды  $\alpha$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> с о.ц.к.-решеткой типа Mn<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и  $\beta$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> с гексагональной плотноупакованной решеткой типа La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и динитрид урана UN<sub>2</sub> с г.ц.к.-решеткой типа CaF<sub>2</sub> [53]. Также имеет место возрастающая с увеличением температуры растворимость азота в жидком уране и незначительная растворимость азота в твердом уране [29, 39, 53–58]. Существование различных композиций мононитрида, как и других нитридов урана, зависит от давления азота и температуры в системе [55–59].

Уран претерпевает два фазовых превращения: (17) при 668 °C и (18) при 776 °C [60]. Температура плавления чистого урана составляет 1135 °C [60]. Имеет место эвтектическая реакция (16) при температуре 1132±4 °C [60] или 1130±4 °C с содержанием урана < 0.02 ат. % [39]. На диаграммах U-N, представленных в [8, 60], наряду с температурой фазового перехода (17) при 668 °C указывается температура 665 °C без каких-либо дополнительных комментариев или ссылок. В [39, 54] и других источниках данная температура, по-видимому, соответствует переходу (17). Авторы [61] со ссылкой на [39] приписывают данную температуру реакции (19).

$$\mathcal{X} \rightleftharpoons \gamma - U + UN$$
 (16)

$$\alpha$$
-U  $\rightleftarrows \beta$ -U (17)

$$\beta$$
-U  $\rightleftarrows \gamma$ -U (18)

$$\beta$$
-U  $\rightleftharpoons \alpha$ -U + UN (19)

Мононитрид урана имеет узкую область гомогенности. В разных источниках сообщается о различных композициях мононитрида урана  $UN_{1\pm x}$ . Состав мононитрида изменяется от  $UN_{0.80}$  на границе  $U_{(x)}$  + UN/UN при 2000 °C до  $UN_{1.01}$  на границе UN/UN +  $N_{2(r)}$  при 1600 °C, как сообщается в [39]. При равновесных давлениях азота в температурном диапазоне 1270–2850 °C минимальное соотношение N/U в мононитриде урана по разным сообщениям находится в пределах 0.991–0.997 и стремится к 1.0 при приближении к комнатной температуре и температуре плавления [54–61]. В работе [61] представлены термодинамические характеристики системы.

На рис. 8 а представлен вариант фазовой диаграммы из [55]. На диаграмме отображена область гомогенности UN, сужающаяся при приближении к температурам диссоциации UN и плавления γ-U. На рис. 8 б представлены два расчетных варианта фазовой диаграммы из [60] и [61].

На фазовой диаграмме из [60] область гомогенности UN имеет постоянную ширину при низких температурах, сужается при приближении к температуре диссоциации. Области гомогенности  $\alpha$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> и  $\beta$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> и их температурные пороги близки к данным из [55]. На диаграмме из [61] область гомогенности UN аналогична [55], однако значительно уже. На диаграмме [61]  $\beta$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> не имеет области гомогенности. Температурные пороги полуторных нитридов также хорошо согласуются с [60]. На всех трех фазовых диаграммах не отмечен динитрид урана UN<sub>2</sub>. На рис. 9 представлены области устойчивости нитридов урана на p-T диаграмме [57].

При давлении азота 0.25 МПа и выше мононитрид урана претерпевает конгруэнтное плавление при температуре, определенной в работе [59] как  $2847\pm30$  °C, что хорошо согласуется с более ранними данными, приводимыми в [54–58, 61, 62]. В общем случае термохимическая стабильность UN, как и других нитридов урана, описывается зависимостью парциального давления азота от температуры  $p_{N_2}(T)$ . При этом равновесное парциальное давление паров над UN зависит от стехиометрии. Парциальное давление паров урана над UN повышается при понижении соотношения U/N, а парциальное давление азота повышается [57]. В работе [62] проведен подробный литературный обзор экспериментальных данных по диссоциации и испарению нитридов в системе U-N.

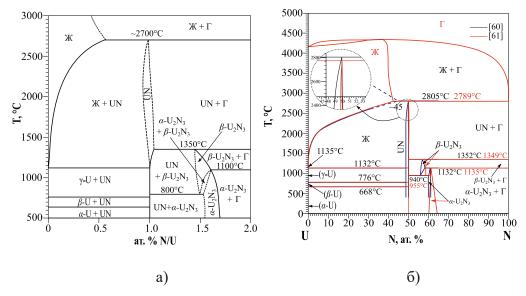


Рис. 8. Фазовая диаграмма U-N: a) – [55]; б) – [60, 61]

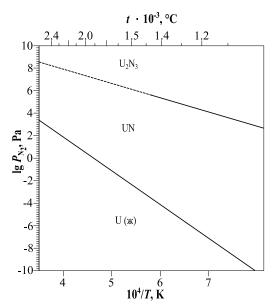


Рис. 9.  $p_{N_2}$ -Т диаграмма устойчивости фаз в системе U-N [57]

В работе [63] обобщены уравнения для термических свойств мононитридов урана и плутония. Известно, что в тройной системе U-Pu-N мононитриды урана и плутония образуют непрерывный ряд твердых растворов [63]. Мононитрид плутония является единственной стабильной фазой в системе Pu-N с температурой плавления  $2830\pm30$  °C при  $p_{N_2}/p_0=50\pm30$  или  $2684\pm30$  °C при  $p_{N_2}/p_0=1$  [63]. Авторы работы [59] также определили температуру плавления образца смешанного мононитрида  $U_{0.8}$ Pu $_{0.2}$ N, составившую  $2772\pm25$  °C при давлении азота 0.25 МПа.

В работе [64] предлагается зависимость для температуры разложения/плавления мононитрида урана от парциального давления азота, в целом хорошо согласующаяся с сериями экспериментальных данных, представленных в [57, 64, 65].

Процесс разложения мононитрида урана может быть описан реакциями (20)–(22), а также реакциями (23), (24) [54, 55, 57, 62]. При разложении UN будет находиться в равновесии с  $U_{(\kappa)}$ ,  $U_{(r)}$ ,  $N_{2(r)}$  и  $UN_{(r)}$ , однако парциальным давлением последнего в расчетах пренебрегают, т.к. его значения значительно меньше парциальных давлений паров азота и урана [55, 57, 62]. Таким образом, для описания процесса разложения мононитрида урана достаточно реакций (20)–(22), где уравнение (22) является суммой уравнений (20) и (21).

$$UN_{\text{\tiny (TB)}} \rightleftarrows U_{\text{\tiny (ж)}} + 0.5 N_{2\text{\tiny (r)}} \tag{20}$$

$$U_{(x)} \rightleftharpoons U_{(r)} + 0.5 N_{2(r)}$$
 (21)  
 $UN_{(TB)} \rightleftharpoons U_{(r)} + 0.5 N_{2(r)}$ 

$$UN_{(rr)} \rightleftarrows U_{(r)} + 0.5 N_{2(r)}$$
 (22)

$$UN_{(TB)} \rightleftharpoons UN_{(r)}$$
 (23)  
 $UN_{(r)} \rightleftharpoons U_{(r)} + 0.5 N_{2(r)}$  (24)

$$UN_{(r)} \rightleftarrows U_{(r)} + 0.5 N_{2(r)}$$
 (24)

Важным фактором в анализе термохимической стабильности UN является растворение азота в жидком уране и влияние этого процесса на парциальное давление азота в системе, о чем говорится в работе [66]. В работах [66-70] было также установлено методом СЭМ/РСМА присутствие металлического урана в образце UN после изотермической выдержки при 1900 °C в течение 250 мин. и давлении гелия 0.1 МПа. При этом начало процесса потери массы за счет выделения азота начинается при 1700-1800 °C. Методом дифференциально-термического анализа ДТА авторы установили, что появление жидкого урана начинается при температуре ~1850 °C [69]. Авторами также обосновано утверждение о двустадийности процесса разложения мононитрида урана, на первой стадии которого вклад в потерю массы вносит, в основном, удаляемый азот, а на второй – испаряющийся жидкий уран. После изотермической выдержки прессованного образца UN в течение 90 мин. при температуре 1800 °C в образце не было обнаружено металлического урана, однако наблюдалась постоянная потеря массы [69]. В работе [71] построена математическая модель скорости термической диссоциации нитридного топлива, проверенная экспериментально методом термогравиметрии во время изотермической выдержки при 1900, 2100 и 2300 °C. Экспериментальные данные, полученные в работе [71], хорошо согласуются с данными термогравиметрии из работ [66, 69]. В [72, 73] обобщены данные о термодинамических свойствах нитридов урана.

Высшие нитриды урана устойчивы до сравнительно низких температур, однако имеют более широкие области гомогенности, чем мононитрид урана. Нитриды α-U<sub>2</sub>N<sub>2</sub> и UN<sub>2</sub> образуют ряд непрерывных твердых растворов с условным разграничением на отдельные фазы в точках с различным соотношением N/U [53-56, 74, 75]. Данные об устойчивости и составе фаз  $\alpha$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> и  $\beta$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> приведены в [53-56]. Зависимости равновесного давления азота от температуры диссоциации  $\alpha$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> и  $\alpha$ -U<sub>2</sub>N<sub>3</sub>-UN<sub>2</sub> представлены в [55, 56]. В работах [74, 75] отражены условия разложения  $UN_{2-x}$  до  $\alpha$ - $U_2N_3$  и  $\alpha$ - $U_2N_3$  до UN. Важно также отметить, что а-U,N, образует непрерывный ряд твердых растворов с UO, в диапазоне температур 1200-1400 °C, в результате чего присутствие кислорода стабилизирует фазу  $\alpha$ -U $_2$ N $_3$  [54, 57].

Как было указано выше, мононитрид урана при диссоциации находится в равновесии с парами урана, азота, а также раствором азота в жидком уране [55]. Выделение жидкого металлического урана может привести к деградации стальной оболочки твэла и взаимодействию с компонентами ТЖМТ и жидкометаллического подслоя. Таким образом, процессы связывания жидкого урана и уноса азота будут поддерживать систему в динамическом, неравновесном состоянии и ускорят диссоциацию топлива. Для прогнозирования сценариев тяжелых аварий важным является точное определение той критической температуры, при которой данный процесс становится возможен. В работе [76] изучались процессы испарения при диссоциации UN в вакууме в динамических условиях. Авторы [76] отмечают образование металлического урана в ходе термической обработки UN при температуре 1800 °С и выше.

Общее давление газа в твэлах со смешанным нитридным уран-плутониевым топливом и гелиевым подслоем, испытанных в реакторе БН-600, составило 0.385 МПа, как сообщается в [77], а максимальная температура топлива составила 1050 °C. Авторы отмечают взаимодействие оболочки твэла с топливом в виде межкристаллитной и очаговой коррозии с повышенным содержанием хрома и кислорода в местах коррозионного поражения стали.

Согласно данным из [78] максимальная температура смешанного нитридного топлива состава  $U_{0.72}$   $Pu_{0.18}$  N в твэле со свинцовым подслоем составила 810 °C, а температура поверхности твэла 630 °C. Авторы сообщают, что в результате облучения топлива в реакторе БОР-60 до выгорания 2.8, 4, 5.5 % тяж. ат. было обнаружено активное взаимодействие оболочки со свинцовым подслоем, характеризующееся ее растворением в одних и образованием слоя металлических отложений в других частях с максимальным утончением оболочки в верхнем сечении топливного столба на  $\sim$ 40 %.

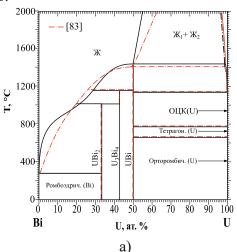
В работах [79, 80] представлены данные о максимальной температуре топлива для составов  $U_{0.4}$   $Pu_{0.6}$  N и  $U_{0.45}$   $Pu_{0.55}$  N в процессе облучения в реакторе БОР-60. По результатам исследования практически не наблюдалось взаимодействия топлива и газообразных продуктов деления с оболочкой твэла.

#### Фазовые равновесия в системе «ТЖМТ-UN»

Достоверных данных о фазовых равновесиях в тройных системах Pb-U-N и Bi-U-N нет, однако можно говорить об отсутствии взаимодействия нитридного топлива со свинцом, по крайней мере, до 800-1000 °C [78, 79]. Активное взаимодействие возможно при выделении химически активного металлического урана в результате диссоциации нитридного топлива. Поэтому в настоящей работе рассматриваются фазовые равновесия в системе Bi-Pb-U и бинарных подсистемах Pb-U, Bi-U.

Фазовые равновесия в системе Pb-U комплексно описаны в [7, 29, 39, 61-84]. В работах [83, 84] приведены результаты термодинамической оптимизации фазовой диаграммы. В системе Pb-U существуют три эвтектические реакции, одна из которых практически вырождена по температуре [7, 82–84]. Расхождение в экспериментальных и расчетных данных наблюдается в отношении синтектической реакции, в результате которой образуется интерметаллическое соединение PbU [82–84]. Растворимость U в жидком Pb в низкотемпературном диапазоне области, обогащенной Pb, описана в работах [29, 38, 84]. В работе [85] представлены температурные зависимости теплоемкости и энтальпии интерметаллида UPb<sub>3</sub>. Оптимизированная фазовая диаграмма системы Pb-U из [84] представлена на рис. 10 а.

Экспериментальные данные в системе Bi-U суммированы в [28, 29, 86]. В работах [87–89] проведена термодинамическая оптимизация фазовой диаграммы. В системе Bi-U существует жидкофазное расслаивание, а также образуется три интерметаллических соединения:  $\text{Bi}_2\text{U}$ ,  $\text{Bi}_4\text{U}_3$ , и BiU [7, 86]. В системе имеют место две перитектические реакции, синтектическая реакции и две эвтектические реакции [29, 86–89]. Растворимость урана в жидком висмуте описана в работе [28]. Вариант оптимизированной фазовой диаграммы Bi-U из работы [88] представлен на рис. 10 б.



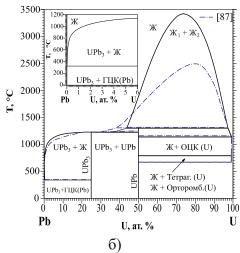


Рис. 10. Бинарные фазовые диаграммы: а) – системы Рb-U [84]; б) – системы Вi-U [88]

Авторы [89] рассчитали на основе параметров бинарного взаимодействия изотермические разрезы тройной фазовой диаграммы Bi-Pb-U при 27 °C (рис. 11 а) и 570 °C (рис. 11 б). Также в работе [89] был проведен анализ тройной системы ( $\mathrm{Bi}_{0.55}\mathrm{Pb}_{0.45}$ )-U и фазовых переходов в ней.

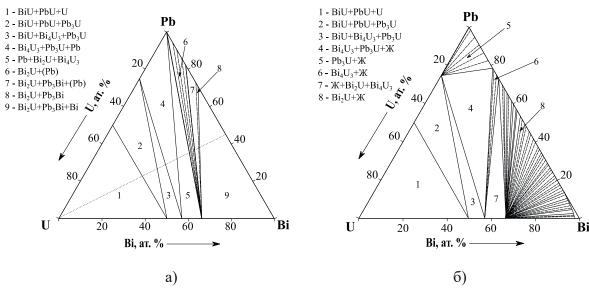


Рис. 11. Изотермические разрезы тройной фазовой диаграммы Bi-Pb-U: а) -27 °C, б) -570 °C [89]

#### Фазовые равновесия в системе «UN-сталь»

По сообщениям из различных источников можно заключить, что мононитрид урана и смешанное нитридное уран-плутониевое топливо не проявляют активного взаимодействия с нержавеющими сталями, по крайней мере, до 600–900 °C [57, 58, 79, 80]. Примеси кислорода и углерода в топливе способствуют науглероживанию и коррозии стали оболочки твэла [57, 77, 79].

В работах [77, 90] приведены результаты исследования облученных твэлов со смешанным нитридным топливом и газовым подслоем. Установлено повышенное содержание хрома и кислорода, а также более низкое содержание никеля и железа в очагах коррозионного поражения оболочек твэлов из ферритно-мартенситной стали ЭП823-Ш, облученных в реакторе БОР-60. Максимальная температура оболочки твэлов с гелиевым подслоем составила  $\sim$ 640 °C в испытаниях в реакторе БН-600 и  $\sim$ 620 °C в реакторе БОР-60 [90].

Авторы [90] также сообщают, что в твэлах со свинцовым подслоем коррозия оболочки твэла характеризуется накоплением никеля и кремния в областях стали, подвергшихся растворению. В работе [78] сообщается о растворении стали с последующим осаждением компонентов (в основном железо и хром) на внутренней поверхности оболочки. Максимальная температура оболочки твэлов со свинцовым подслоем во время испытания в реакторе БОР-60 составила ~580 °C.

В работе [96] методом диффузионных испытаний проведен анализ взаимодействия мононитрида урана с нержавеющей сталью с образованием нитридов  $Fe_3N$  и  $U_2CrN_3$ . Авторы [91] сообщают, что при испытании в течение 200 ч. при температуре 600 °C взаимодействия не происходит, а при температуре 1000-1100 °C наблюдается появление слоя взаимодействия толщиной 2-5 мкм для стали  $3\Pi823$ .

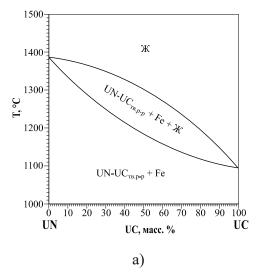
В [92] сообщается об активном взаимодействии между UN и никелем при  $800\,^{\circ}$ C. Взаимодействие UN с железом и хромом при  $1000\,^{\circ}$ C связывают с содержанием  $U_2N_3$  в топливе и кислорода в стали оболочки твэла. Примеси углерода и кислорода наряду со стехиометрией

влияют на совместимость топлива со сталью оболочки твэлов при температурах до 1000 °C. Свободный уран взаимодействует с компонентами стали по эвтектическим реакциям, а нитрид хрома образуется в виде осадков по границам зерен стали в местах контакта с  $U_2N_3$ . Также сообщается о взаимодействии оболочки твэла с топливом состава  $U_{0.8}Pu_{0.2}N$ , содержащим  $U_2N_3$  до облучения.

В [93] сообщается о результатах исследования совместимости UN с нержавеющей сталью при температурах 1000–1350 °C, 700–1000 °C с железом, 800–1000 °C с хромом, 600–1200 °C с никелем. Реакции с ограниченным количеством избыточного азота и кислорода, присутствующего в качестве примеси, наблюдались в случаях с нержавеющей сталью, железом и хромом. Взаимодействия азота с железом не было обнаружено. Более интенсивная реакция наблюдалась для UN и никеля.

#### Фазовые равновесия в системах UN-X (X: Fe, Cr, Ni)

Экспериментальные данные по взаимодействию UN с железом суммированы в [56, 94]. В работе [95] авторы уточняют полученные ранее в системе UN-Fe данные об эвтектике с содержанием железа 49 масс. %, плавящейся при 1395 °C. Отжиг образцов в данной работе проводился в атмосфере очищенного аргона. Авторы изучали фазовые равновесия в системе UN-UC-Fe и определили температуры фазовых переходов для различных составов. При увеличении содержания углерода в U(N,C) температура эвтектического превращения с железом снижается с 1395 °C для чистого UN до 1090 °C для чистого UC (рис. 12 а). Для системы  $U(N_{0.5}C_{0.5})$ -Fe построена псевдобинарная фазовая диаграмма (рис. 12 б). Поскольку UN образует с UC непрерывный ряд твердых растворов [56], по данной диаграмме можно косвенно судить о характере превращений в системе UN-Fe.



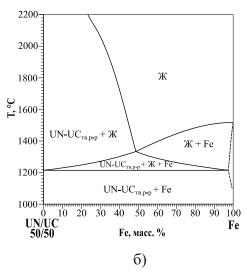


Рис. 12. Превращения в системе U(N,C)-Fe: а) — вариация начала и окончания температур плавления эвтектик для различных составов U(N,C); б) — псевдобинарная фазовая диаграмма  $U(N_0,C_0,C_0)$ -Fe [95]

В работе [96] со ссылкой на более ранние труды сообщается об отсутствии взаимодействия UN с Fe при 1000 °C, за исключением взаимодействия, обусловленного примесями, такими как кислород в стали. Сколько-нибудь заметной растворимости Fe в UN не наблюдается [95, 96].

Авторам и [96] экспериментально изучено взаимодействие UN и Fe при температурах  $1000~^{\circ}\text{C}$  и  $1400~^{\circ}\text{C}$  при различных давлениях азота. Сделано заключение, что взаимодействие UN и Fe с образованием UFe $_2$  практически нереализуемо при температуре ниже  $1400~^{\circ}\text{C}$ , при температуре выше  $1400~^{\circ}\text{C}$  при различных давлениях азота в системе имеет место эвтектическая

реакция и возможно образование UFe<sub>2</sub>.

На основе экспериментальных данных, включая обсуждаемые выше, в [94] предложен вид псевдобинарной фазовой диаграммы для системы UN-Fe (рис. 13). Она имеет вид фазовой диаграммы эвтектического типа с отсутствием растворимости компонентов в твердом состоянии.

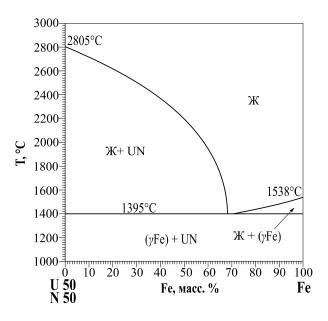


Рис. 13. Псевдобинарная фазовая диаграмма UN-Fe [94]

Мононитрид урана не взаимодействует с хромом при температурах до 1000 °C [56, 96]. В работе [56] на основе экспериментальных исследований построен предварительный изотермический разрез (рис. 14 а) [56]. Отмечается также взаимодействие  $\operatorname{Cr} \operatorname{c} \operatorname{U}_2\operatorname{N}_3$  при 1000 °C с образованием сложного нитрида  $\operatorname{UCrN}_2$  [56].

В работе [96] авторы наряду с системой UN-Fe провели исследование систем UN-Cr и UN-Ni. Показано, что UN не взаимодействует с Cr при 1000 °C ни в вакууме, ни при повышенном давлении азота, однако имеет место превращение UN в  $U_2N_3$  и взаимодействие Cr с  $N_2$  с образованием  $Cr_2N$  и CrN. Соединение  $U_2CrN_3$  образуется в результате нагрева UN с Cr, однако в вакууме разлагается обратно до UN и Cr. При этом в зависимости от давления может происходить взаимодействие Cr с  $N_2$ . Так во время более медленного разложения в вакууме  $U_2CrN_3$  при 1000 °C не удалось определить Cr или  $Cr_2N$  является вторым продуктом разложения. При температуре ниже 1250 °C  $U_2CrN_3$  разлагается до UN и  $Cr_2N$ , а выше данной температуры до UN и Cr.

В [56] представлены результаты экспериментальных исследований совместимости UN с Ni. Исследования [97] системы U-Ni-N в интервале температур 1200–1600 °С под давлением азота или аргона, равном 0.1 МПа, позволили построить предварительное изотермическое сечение тройной фазовой диаграммы (рис. 14 б).

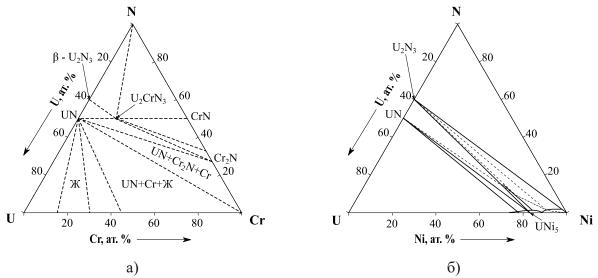


Рис. 14. Изотермический разрез системы U-Cr-N в условиях: а) -1600 °C, 53.3 кПа  $N_2$  [56]; б) – фазовые равновесия и предварительные границы проекции на ликвидус в системе U-Ni-N в условиях: 1200-1600 °C, 0.1 МПа.  $N_2$ /Ar [97]

В работе [97] также сообщается о взаимодействии UN и Ni с образованием интерметаллидов и выделением азота по реакциям (25), (26) [98]. На диаграмме отсутствует разрез по лучу UN-Ni.

$$3UN + 5Ni \rightleftharpoons U_2N_3 + UNi_5 \tag{25}$$

$$UN + 5Ni \rightleftharpoons UNi_5 + 1/2N_2 \tag{26}$$

В [96] сообщается, что во множестве экспериментальных исследований соединение UNi $_5$  было единственным продуктом взаимодействия UN с Ni при соотношении U/Ni более 1:5. Реакция разложения UNi $_5$  до U $_2$ N $_3$  и Ni имеет место при повышенном давлении азота. Для реакции (25) авторами получена температурная зависимость равновесного давления азота. Для реакции (27) авторы измеряли равновесное давление азота в интервале температур 800–1050 °С и вывели температурную зависимость. Авторы [96] показали, что в присутствии Ni имеет место реакция (28).

$$U_2N_3 + 10Ni \rightleftharpoons 2UNi_5 + 3/2N_2$$
 (27)

$$2U_2CrN_3 + 20Ni \rightleftharpoons 4UNi_5 + Cr_2N + 5/2N_2$$
 (28)

Обобщив экспериментальные данные и термодинамические расчеты для систем U-N-Cr и U-N-Ni, авторы сделали заключение о несовместимости UN с Cr и Ni при одновременном присутствии металлов.

В работе [99] исследовалась возможность повышения коррозионной устойчивости UN допированием Cr и CrN/Cr<sub>2</sub>N за счет торможения диффузии кислорода. Исследования композитов UN-Cr и UN-CrN показали образование фазы  $U_2\text{CrN}_3$ . На основании близости структур орторомбической кристаллической решетки  $U_2\text{CrN}_3$  и кубической UN авторы предложили рассматривать фазу  $U_2\text{CrN}_3$  как твердый раствор Cr в UN с предельной растворимостью 33 ат. % Cr. Образование металлического Cr в композитах UN-CrN авторы связали с присутствием  $\text{Cr}_2\text{N}$  в прекурсоре.

В работе [100] тех же авторов были изучены физические и механические свойства фазы  $U_2 CrN_3$ . Близость механических свойств  $U_2 CrN_3$  к UN и более прочная связь урана в тройной структуре, препятствующая диффузии и образованию вакансий, позволили сделать заключение о данном соединении, как о потенциальном ядерном топливе. В работе [101] исследована коррозионная стойкость UN, допированного  $Cr_2 N/CrN$ .

В работе [102] проведена расчетная оценка свойств тугоплавких металлов, включая хром, с целью выявления лучших кандидатов для инкапсуляции UN в перспективном композиционном топливе UN-UO $_2$ . В работе [103] приведены результаты экспериментов по исследованию диффузии под давлением в системе UO $_2$ -Cr-UN. Сделан вывод о непригодности хрома для инкапсуляции UN в топливных UN-UO $_2$  композитах.

#### Фазовые равновесия в системах U-X (X: Fe, Cr, Ni)

Важными с точки зрения прогнозирования взаимодействия нитридного топлива со сталью оболочки твэла являются металлические ураносодержащие системы. В работе [104] обобщены данные о фазовых равновесиях для сплавов актинидов друг с другом и с другими металлами, а также приведены некоторые термодинамические данные для систем U-X, где X: Fe, Cr, Ni.

Фазовые равновесия в системе Fe-U подробно описаны в различных источниках [7, 13, 105–109]. В работах [7, 13, 105] на основе экспериментальных и расчетных данных построены первые варианты бинарной фазовой диаграммы, хорошо согласующиеся между собой. В работе [106] произведена оптимизация термодинамических данных в системе и построена фазовая диаграмма. Компоненты системы образуют два интерметаллических соединения Fe<sub>2</sub>U и FeU<sub>6</sub>. Эвтектическая реакция (29) имеет место при 1084 °C в точке с содержанием 47 масс. % U [107]. Эвтектическая реакция (30) имеет место при 728 °C в точке с содержанием 89 масс. % U [107]. В работах [13, 105–107] представлены данные о взаимной растворимости компонентов системы. Фазовая диаграмма воспроизведена из [106] с коррекцией температур эвтектик из [107] (рис. 15 а). В работе [108] авторы исследовали процесс диффузии в системе Fe-U в диапазоне температур 580–700 °C.

$$\mathcal{X} \rightleftharpoons \gamma$$
-Fe (г.ц.к.) + Fe<sub>2</sub>U (29)

$$\mathcal{K} \rightleftharpoons \mathrm{Fe_2U} + \mathrm{FeU_6} \tag{30}$$

Фазовые равновесия в системе U-Cr также достаточно подробно изучены и описаны [7, 8, 29, 38, 109–112]. В работе [110] фазовая диаграмма была оптимизирована на основе предыдущих экспериментальных данных. В работе [111] фазовая диаграмма была проанализирована и предложен ее уточненный расчетный вариант (рис. 15 б). В системе присутствует эвтектическая реакция (31) при температуре 860 °C в точке с содержанием 81 ат. % U [110]. В работах [29, 38, 109, 111] представлены данные о растворимости компонентов системы.

$$\mathcal{K} \rightleftharpoons \mathrm{Cr} + \gamma - \mathrm{U}$$
 (31)

Исследования системы Ni-U обобщены в работах [7, 29, 38, 113–115]. Оптимизированный вариант фазовой диаграммы представлен в [115] (рис. 15 в).

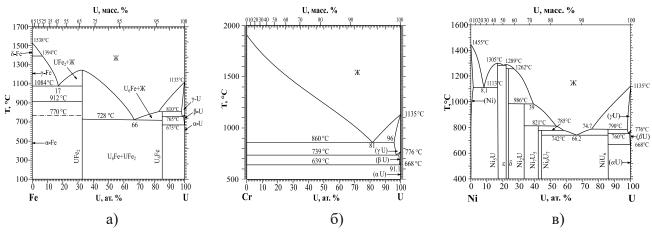


Рис. 15 — Фазовые диаграммы систем: a) — Fe-U [107]; б) — Cr-U [112]; в) — Ni-U [115]

В системе Ni-U обнаружено семь интерметаллидов:  $U_6$ Ni,  $U_7$ Ni<sub>0</sub>,  $U_5$ Ni<sub>1</sub>, UNi<sub>1</sub>,  $\delta$ -фаза, ε-фаза и UNi<sub>ε</sub> [7, 113-115]. В системе существуют три эвтектические реакции: (32) при 1113 °C в точке с содержанием 8.1 ат. % U, (33) при 1289 °C в точке с содержанием 20.0 ат. % U и (34) при 742 °C в точке с содержанием 66.2 ат. % U [115]. Также обнаружены эвтектоидная реакция (35) при 760 °C в точке с содержанием 98.5 ат. % U [115] и пять перитектических реакций с образованием интерметаллидов. В работах [29, 38, 113, 114] представлены данные о растворимости компонентов системы.

$$\mathcal{K} \rightleftarrows UNi_{5} + Ni$$
 (32)

$$\mathcal{K} \rightleftharpoons \varepsilon + UNi_{5}$$

$$\mathcal{K} \rightleftharpoons U_{6}Ni + U_{7}Ni_{9}$$
(33)
(34)

$$\mathcal{K} \rightleftharpoons U_6 N_1 + U_7 N_{1_0} \tag{34}$$

$$\gamma$$
-U  $\rightleftharpoons \beta$ -U + U<sub>6</sub>Ni (35)

В работе [116] авторы исследовали профили взаимодействия U-Fe, U-(Fe, 15 масс. % Cr), U-(Fe, 15 масс. % Cr, 15 масс. % Ni) в диапазоне температур от 580 до 700 °C. В паре U-Fe образуются два слоя интерметаллидов U<sub>6</sub>Fe и UFe<sub>2</sub>. В паре U-(Fe, Cr) наблюдалось растворение до 20 масс. % Ст в фазе UFe<sub>2</sub>, однако растворимости Ст в фазе U<sub>6</sub>Fe не обнаружено. В паре U-(Fe, Cr, Ni) наблюдалась растворимость до 2.5 масс. % Ni в фазе  $U_6$ Fe, а также растворимость Cr и Ni в фазе UFe, до 7 и 14 масс. %, соответственно. В работе также описана температурная зависимость диффузии и отмечено образование значительно более толстого слоя U<sub>6</sub>Fe по сравнению с UFe<sub>2</sub>.

#### $\Phi$ азовые равновесия в системах X-N (X: Fe, Cr, Ni)

Бинарные азотосодержащие системы рассматриваются в различных источниках [7, 8, 11-13, 50, 117-119]. Обзоры тройных азотосодержащих систем приведены в [12, 15, 120-123].

В системе Cr-N существуют стабильные нитриды: Cr<sub>2</sub>N и CrN [7, 11, 50, 117, 118], которые образуются по газоперитектической реакции (36) при 1740 °C и газоперитектоидной реакции (37) при 1049 °C [7, 11]. Эвтектическая реакция (38) наблюдается при 1640 °C в точке с содержанием 13.4 ат. % N [7]. Температурные зависимости и изотермы растворимости азота в (Ст), равновесные давления азота при диссоциации нитридов представлены в [55]. Также в [55] представлены варианты фазовой диаграммы Ст-N для разных давлений N, (рис. 16, а), изобарные и изотермические сечения для системы. Диссоциация и испарение нитридов хрома подробно рассматривается в работе [62].

$$\mathcal{K} + N_2 \rightleftarrows Cr_2 N \tag{36}$$

$$\operatorname{Cr}_{2}N + \operatorname{N}_{2} \rightleftarrows \operatorname{Cr}N$$
 (37)

$$\mathcal{K} \rightleftarrows (Cr) + Cr, N$$
 (38)

Система Fe-N достаточно подробно рассмотрена в [7, 8, 11-13, 60, 117, 118]. В системе Fe-N присутствуют следующие фазы:  $Fe_4N(\gamma')$ ,  $Fe_5N(\zeta)$ ,  $Fe_3N(\epsilon)$  и метастабильная фаза  $Fe_{16}N_5$ (азотистый мартенсит). Данные о фазовых переходах, а также о растворимости азота в ү-Fe представлены в [7, 8, 13]. Обнаружены три инвариантные реакции: конгруэнтный переход (39) при 680 °C, эвтектоидная реакция (40) при 650 °C и эвтектоидная реакция (41) при 592 °C [7, 8, 13]. В работе [117] проведено термодинамическое описание и моделирование систем Fe-N и Fe-N-C (рис. 16 б). В [72] суммированы данные по диссоциации и испарению нитридов в системе Fe-N, растворимости азота в железе при различных температурах и давлениях в системе. Расчетный вид ликвидуса в системе Fe-N с изобарами дан в работе [118].

$$\varepsilon \rightleftarrows \gamma'$$
 (39)

$$\varepsilon \rightleftharpoons \gamma \text{-Fe} + \gamma'$$
 (40)

$$\gamma$$
-Fe  $\rightleftarrows \alpha$ -Fe +  $\gamma'$  (41)

Система Ni-N изучена менее подробно, чем Cr-N и Fe-N. Данные о фазовых равновесиях системе Ni-N обобщены в работах [7, 8, 119]. Результаты экспериментальных исследований приведены в [28, 29]. Достоверно известно о существовании стабильных нитридов  $Ni_4N$  и  $Ni_3N$ . Растворимость азота в твердом и жидком никеле крайне мала. В работе [119] авторы провели экспериментальное исследование системы Ni-N в диапазоне 400–600 °C и термодинамическое моделирование части фазовой диаграммы, обогащенной по Ni.

Комплексный обзор фазовых равновесий в системе Cr-Fe-Ni-N, включая бинарные и тройные подсистемы, представлен в работе [120]. Также авторы приводят равновесные изотермические разрезы для различных композиций в данной системе и обсуждают растворимость азота в сплавах различного состава. Авторами представлен политермический разрез в виде зависимости Т (°C) от содержания N (масс. %) с изобарами азота для сплава с содержанием 15 масс. % Cr и 15 масс. % Ni.

Более поздние обзоры описывают фазовые равновесия в системах Cr-Fe-N [121, 122] и Cr-Ni-N [123]. Для системы Cr-Fe-N в обзорах [121, 122] представлены кристаллографические данные твердых фаз, проекции на ликвидус (рис. 16 в), солидус, изотермические разрезы между 567 °C и 1400 °C, температурные зависимости растворимости азота в твердых и жидких фазах различного состава. В [122] представлена схема инвариантных реакций для системы Cr-Fe-N для температур выше 800 °C, а также вертикальный разрез по лучу Fe-Cr<sub>2</sub>N. В обзоре системы Cr-Fe-N [12, 122] сообщается о четырехфазном равновесии перитектического типа  $\mathcal{K} + \alpha \rightleftharpoons \gamma + \mathrm{Cr}_2 \mathrm{N}$ . Авторами [12] приводится вариант пространственного изображения части системы Cr-Fe-N.

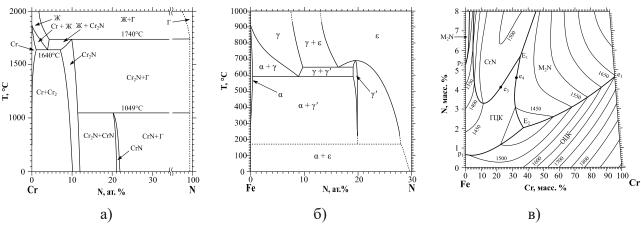


Рис. 16. Фазовые диаграммы систем: a) — Cr-N [55]; б) — Fe-N [117]; в) — проекция поверхности ликвидус в системе Cr-Fe-N [122]

В [123] проведен обзор системы Fe-Ni-N. Приведены температурные зависимости растворимости азота в жидких сплавах (Fe,Ni) и  $\gamma$ -(Fe,Ni) для различного содержания Ni. Даны также частичные изотермические разрезы фазовой диаграммы Fe-N-Ni при 500 и 700 °C и описан эффект влияния количества никеля на форму границ  $\gamma$ -фазы в системе Fe-N при содержании от 2 до 16 ат. % Ni. Отмечается существование твердых растворов  $Fe_{4-x}Ni_xN$  на основе  $Fe_4N$  ( $\gamma'$ ) и  $Fe_{3-x}Ni_xN$  на основе  $Fe_3N$  ( $\epsilon$ ).

#### Заключение

К настоящему времени построены и проанализированы фазовые диаграммы для большинства бинарных и некоторых тройных подсистем системы U-Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-N. В данной работе уделено внимание фазовым равновесиям в системах Fe-Pb, Fe-Bi, Cr-Pb, Cr-Bi, Ni-Pb, Ni-Bi, которые характеризуют взаимодействие материала оболочки твэла со свинцовым и свинцово-висмутовым теплоносителем. Отмечен общий характер из перечисленных бинарных

систем — наличие широкой области несмешиваемости и низкая взаимная растворимость компонентов друг в друге. Исключение составляет система Ni-Bi, в которой имеет место образование интерметаллидов BiNi и Bi,Ni.

Из приведенной о системе Fe-Pb информации можно сделать вывод, что взаимодействие свинцового теплоносителя с железом в инертной атмосфере имеет место уже при температуре эвтектики, близкой к температуре плавления свинца. При длительном контакте при высокой температуре в неравновесных условиях возникает потенциальная проблема активного взаимодействия стали со свинцовым теплоносителем. При взаимодействии свинцово-висмутовой эвтектики со сталью при данных условиях существует та же проблема — растворимость компонентов стали в жидком теплоносителе. Несмотря на наличие достоверных экспериментальных данных о растворимости Fe, Cr и Ni в Pb, Bi и свинцово-висмутовой эвтектике, тройные фазовые диаграммы частично построены лишь для систем Fe-Ni-Pb и Bi-Ni-Pb. Важно отметить, что фазовая диаграмма Bi-Fe-Pb требует построения, как базовая для системы «свинцовый теплоноситель — сталь оболочки твэл». Система Cr-Pb требует дополнительных экспериментальных исследований по изучению растворимости компонентов друг в друге. Исследование температурных пределов устойчивости ферритно-мартенситных сталей при высокотемпературном взаимодействии со свинцовым теплоносителем также требует экспериментальных исследований в тройной системе Cr-Fe-Pb и построения тройной фазовой диаграммы.

Для тройной системы Fe-Ni-Pb рассчитаны два изотермических разреза при 1512 °C и 1553 °C. В области, обогащенной по никелю, на изотермических разрезах отмечается значительная растворимость железа и свинца в жидкой фазе на основе никеля. Для системы Bi-Ni-Pb построены два субсолидусных изотермических разреза при 100 °C и 300 °C, а также рассчитана проекция поверхности ликвидус. На изотермическом разрезе при 300 °C обнаружено двухфазное и трехфазное равновесие между жидкой фазой и интерметаллидами висмута и никеля, что говорит о несовместимости никельсодержащих сталей и сплавов со свинцово-висмутовым теплоносителем.

Важными характеристиками системы U-N является зависимость температуры и характера диссоциации нитридов урана от давления азота в системе, наличие узкой области гомогенности у мононитрида урана, образование твердого раствора между  $\alpha$ -U $_2$ N $_3$  и UN $_2$ , а также между  $\alpha$ -U $_2$ N $_3$  и UO $_2$ . Установленная температура в 1850 °C для начала выделения жидкого металлического урана из мононитрида в токе гелия является критически важной информацией. Нитриды UN и PuN обладают близкими свойствами и образуют непрерывный ряд твердых растворов. Для композиций СНУП-топлива ожидается снижение порога термохимической стабильности на температуру, пропорциональную разнице температур плавления UN и U $_{1-x}$ Pu $_x$ N. При этом характер высокотемпературного взаимодействия с материалами активной зоны у них остается схожим — взаимодействие металлического U или Pu в результате диссоциации топлива.

Имеющаяся информация о фазовых равновесиях в системах Fe-U-N, Cr-U-N, Ni-U-N позволяет лишь косвенно судить о порогах стабильности материала оболочки твэла и нитридного топлива при взаимодействии друг с другом в области температур выше  $1000\,^{\circ}$ С. В отношении эвтектики в псевдобинарной системе UN-Fe требуется исследование влияния легирующих компонентов стали на фазовые равновесия в системе. В настоящее время отсутствуют надежные экспериментальные данные по высокотемпературному взаимодействию мононитрида урана со сталями оболочек твэла и их расплавами. В системе Cr-U-N требуется определение температурных порогов стабильности  $U_2 Cr N_3$ . В системе Ni-U-N необходимо уточнение данных по продуктам взаимодействия UN и Ni и уточнение p-T диаграмм для реакций между UN и Ni.

Подробно изучены фазовые равновесия в системах Pb-U, Bi-U, которые дают представление о характере взаимодействия ТЖМТ с металлическим ураном как продуктом термо-

химической диссоциации мононитрида урана. В обеих системах имеет место образование интерметаллидов. Фазовая диаграмма в тройной системе Bi-Pb-U рассчитана в виде двух изотермических разрезов при  $27~^{\circ}$ C и  $570~^{\circ}$ C.

Нитриды и растворимость азота в металлах в бинарных системах Fe-N, Cr-N достаточно подробно изучены. Недостаток данных отмечается в системе Ni-N. Исследованы фазовые равновесия в тройных системах Cr-Fe-N, Fe-Ni-N и в четырехкомпонентной системе Cr-Fe-Ni-N.

Общим выводом из обзора фазовых равновесий в системе U-Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-N является не только необходимость уточнения и расширения данных о фазовых равновесиях в бинарных и тройных системах, но проведение интегральных экспериментальных исследований высокотемпературного взаимодействия материалов в системе «нитридное топливо — сталь оболочки твэла — тяжелый жидкометаллический теплоноситель». Для валидации расчетных кодов важны данные о коэффициентах распределения продуктов диссоциации топлива и компонентов стали между несмешивающимися жидкими фазами (расплавами на основе свинца и на основе железа), образующимися в ходе гипотетической тяжелой аварии. Представляет интерес исследование процессов, происходящих в расплаве материалов активной зоны, как в инертной атмосфере, так и в окислительной, так как в ходе запроектной аварии невозможно полностью исключить вероятность разгерметизации реакторного пространства и поступления окислителя в газовую фазу над расплавом.

#### **Conclusions**

Phase diagrams for main binary and some ternary subsystems in U-Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-N system are constructed and analyzed. The paper focuses on the phase equilibria in Fe-Pb, Fe-Bi, Cr-Pb, Cr-Bi, Ni-Pb, and Ni-Bi systems, which characterize the interaction between fuel cladding material and lead/lead-bismuth coolant. Common features of the mentioned binary systems are observed, such as a wide immiscibility region and low solubility of the components in each other. An exception is Ni-Bi system where generation of BiNi and Bi<sub>3</sub>Ni intermetallic compounds is observed.

From data about Fe-Pb system, it can be concluded that interaction of lead coolant with iron in an inert atmosphere occurs even at the eutectic temperature close to the lead melting temperature. In case of a long time contact and high temperature under nonequilibrium conditions, a problem of active interaction between steel and lead coolant may arise. A similar effect, namely, dissolution of steel components in liquid coolant is observed for interaction of lead-bismuth eutectic with steel under the above-mentioned conditions. Although reliable experimental data on the solubility of Fe, Cr, and Ni in Pb, Bi, and lead-bismuth eutectic are available, ternary phase diagrams are constructed only for Fe-Ni-Pb and Bi-Ni-Pb systems. It is important to note that Bi-Fe-Pb phase diagram should be constructed as a base diagram for "lead coolant – fuel steel cladding" system. The Cr-Pb system requires additional experimental studies on the solubility of the components in each other. Determination of temperature stability limits for ferritic/martensitic steel interacting with lead coolant at high temperatures also requires experimental studies on the Cr-Fe-Pb ternary system and construction of a ternary phase diagram.

Two isothermal cuts at 1512 °C and 1553 °C are calculated for the Fe-Ni-Pb ternary system. In the nickel-enriched region, the isothermal cuts show high solubility of iron and nickel in the nickel-base liquid phase. For the Bi-Ni-Pb system, two subsolidus isothermal cross-sections at 100 °C and 300 °C are constructed and a melting diagram is calculated. A two-phase and three-phase equilibrium between the liquid phase and bismuth and nickel intermetallic phases is observed in the isothermal cut at 300 °C, indicating the incompatibility of nickel-containing steel and alloys with lead-bismuth coolant.

Important features of the U-N system are nitrogen pressure dependence of uranium nitride disso-

ciation temperature and character, presence of a narrow homogeneous region in uranium mononitride, formation of a solid solution between  $\alpha$ - $U_2N_3$  and  $UN_2$  and between  $\alpha$ - $U_2N_3$  and  $UO_2$ . The 1850 °C temperature at which liquid metallic uranium starts to separate from mononitride under helium flow is a critically important information obtained. The UN and PuN nitrides have close properties and form a continuous series of solid solutions. The thermochemical stability threshold for MNUP fuel compositions is expected to decrease by a temperature proportional to the difference in melting temperatures between UN and  $U_{1-x}Pu_xN$ . Still, they demonstrate a similar character of high temperature interaction with core materials – interaction of metallic U or Pu because of fuel dissociation.

Available information about the phase equilibria in Fe-U-N, Cr-U-N, and Ni-U-N systems only allows for an indirect estimation of the stability thresholds for fuel cladding material and nitride fuel interacting with each other at temperatures above 1000 °C.

An analysis of the influence of steel alloying elements on the phase equilibria in the pseudobinary eutectic system UN-Fe is required. Reliable experimental data are lacking for high temperature interaction of uranium mononitride with fuel cladding steel and its melt. In Cr-U-N system, the temperature stability thresholds for U<sub>2</sub>CrN<sub>3</sub> should be determined. In Ni-U-N system, data on UN and Ni interaction products and p-T diagrams for reactions between UN and Ni should be verified.

The phase equilibria in Pb-U and Bi-U systems are studied in detail. They provide insight into the character of interaction between heavy liquid metal coolant and metallic uranium produced by thermochemical dissociation of uranium mononitride. Formation of intermetallic phases is observed in both systems. The phase diagram in Bi-Pb-U ternary system is constructed as two isothermal cuts at 27 °C and 570 °C.

Nitrides and nitrogen solubility in Fe-N and Cr-N binary systems are sufficiently well studied. Data is lacking in Ni-N system. The phase equilibria in Cr-Fe-N and Fe-Ni-N ternary systems and Cr-Fe-Ni-N quaternary system are studied.

Based on review of the phase equilibria in U-Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-N system, a general conclusion is that there is a necessity to not only verify and broaden the data about phase equilibria in binary and ternary systems, but also conduct integral experimental investigations into high temperature interactions of materials in the "nitride fuel – fuel cladding steel – heavy liquid metal coolant" system. For validation of computer codes, it is important to know the distribution coefficients of fuel dissociation products and steel components between immiscible liquid phases (lead-base and iron-base melts) that result from a hypothetical severe accident. It is interesting to study the processes occurring in the melt of core materials under both inert and oxidizing atmospheres, since during a beyond design basis accident it is impossible to completely eliminate the possibility of depressurization of the reactor space and the entry of the oxidizer into the gas phase above the melt.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 22-29-01493).

### Литература

- 1. Экспериментальные исследования тяжелых аварий на АЭС / В.И. Альмяшев, В.Б. Хабенский, В.С. Грановский, Е.В. Крушинов, С.А. Витоль, А.А. Сулацкий, Е.В. Шевченко // Атомная энергия. 2022. Т. 132, вып. 2. С. 110—116.
- 2. Расчетно-теоретические исследования теплофизических и физико-химических процессов при тяжелых авариях на АЭС с ВВЭР / В.Б. Хабенский, В.С. Грановский, А.А. Сулацкий, М.Б. Сулацкая, В.И. Альмяшев // Атомная энергия. 2022. Т. 132, вып. 2. С. 116—121.

- 3. К вопросу о достижимости естественной безопасности ЯЭУ пятого поколения / И.С. Слесарев, Е.О. Адамов, В.Н. Леонов, А.В. Лопаткин, В.И. Рачков, Ю.С. Хомяков // Известия РАН. Энергетика. 2020. № 3. С. 15–32.
- 4. Обзор экспериментальных программ по исследованию плавления элементов активных зон быстрых реакторов в аварийных условиях / В.С. Жданов, Н.А. Мосунова, Н.А. Прибатурин, В.Ф. Стрижов, Э.В. Усов // ВАНТ. Серия: Ядернореакторные константы. − 2019. − № 1. − С. 238−249.
- 5. Алексеев С.В. Нитридное топливо для ядерной энергетики / С.В. Алексеев, В.А. Зайцев. М.: Техносфера, 2013. 239 с.
- 6. Review of phase equilibria in the Pb-Bi-Fe-Cr-Ni-U-N system Basis for a "heavy liquid metal coolant fuel cladding steel nitride fuel" interactions / A.V. Timchuk, E. Kurguzkina, E.V. Shuvaeva, V.I. Almjashev // J. Nucl. Mater. 2024. V. 589. Art. 154852. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2023.154852.
- 7. Диаграммы состояния двойных металлических систем: справочник в 3 т., Т. 3 / под ред. Н.П. Лякишева. М.: Машиностроение, 1996. 872 с.
- 8. Massalski B. Binary alloy phase diagrams. Ohio: Publ. ASM, Metals Park, 1986.
- 9. *Gokcen N*. The Bi-Pb (Bismuth-Lead) system // JPE. 1992. V. 13. P. 21–32. https://doi.org/10.1007/BF02645372.
- 10. *Gosse S.* Thermodynamic assessment of solubility and activity of iron, chromium, and nickel in lead bismuth eutectic // J. Nucl. Mater. 2014. V. 449. P. 122–131. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.03.011.
- 11. *Барабаш О.М.* Структура и свойства металлов и сплавов / О.М. Барабаш, Ю.Н. Коваль. Киев: Наукова думка, 1986.
- 12. Диаграммы состояния двойных и многокомпонентных систем на основе железа / под ред. О.А. Банных. М.: Металлургия, 1986.
- 13. *Goldbeck von O.K.* IRON-Binary Phase Diagrams. Berlin: Springer; Heidelberg, 1982. https://doi.org/10.1007/978-3-662-08024-5.
- 14. *Lukas H.L.* Chromium-Iron-Nickel / H.L. Lukas, P. Agravel // Landolt-Börnstein New Series IV/11D3 / eds.: G. Effenberg, S. Ilyenko. 2008. https://doi.org/10.1007/978-3-540-74199-2\_12.
- 15. SGTE 2020 Alloy Phase Diagrams. Accessed Jun 28, 2023. https://www.crct.polymtl.ca/fact/phase diagram.php?file=Fe-Pb.jpg&dir=SGTE2020.
- 16. Cr-Fe-Ni (Chromium-Iron-Nickel) / Scientific Group Thermodata Europe (SGTE) // Landolt Börnstein New Series IV/19C1 / eds.: P. Franke, H.J. Seifert. 2012. https://doi.org/10.1007/978-3-540-88142-1 88.
- 17. Raghavan V. Cr-Fe-Ni (Chromium-Iron-Nickel), Section II: Phase Diagram Evaluations // J. Ph. Equilibria Diffus. 2009. V. 30. P. 94–95. https://doi.org/10.1007/s11669-008-9449-y.
- 18. *West D.R.F.* Ternary Phase Diagrams in Materials Science, Routledge, Abingdon, UK. 2017.
- 19. *Tomiska J*. The system Fe–Ni–Cr: revision of the thermodynamic description // J. Alloys Compd. 2004. V. 379. P. 176–187. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2004.02.027.
- 20. Перспективы использования нитридного топлива в быстрых реакторах с замкнутым топливным циклом / В.М. Троянов [и др.] // Атомная энергия. -2014.-T.117, вып. 2.-C.69-74.

- 21. *Лемехов В.В.* Активная зона реактора БРЕСТ: современное состояние и перспективы / В.В. Лемехов, В.С. Смирнов, А.А. Уманский // Проблемы машиностроения и автоматизации. 2013. № 2. С. 89–93.
- 22. Исследования конструкционных материалов для реактора со свинцовым теплоносителем / С.Н. Бозин [и др.] //Атомная энергия. 2012. Т. 113, вып. 5. С. 257—263.
- 23. Патент № 2218445 С2 РФ, МПК С22С 38/54. Жаропрочная радиационно-стой-кая сталь: № 2001132234/02 / М.И. Солонин, А.Г. Иолтуховский, М.В. Леонтьева- Смирнова [и др.]; Федеральное государственное унитарное предприятие «Всероссийский научно-исследовательский институт неорганических материалов им. акад. А.А.Бочвара». Заявл. 28.11.2001; опубл. 10.12.2003.
- 24. *Митрофанова Н.М.* Сталь ЭК164-конструкционный материал оболочек твэлов реакторов БН / Н.М. Митрофанова, Т.А. Чурюмова // ВАНТ. Серия: Материаловедение и новые материалы. 2019. №. 2. С. 100–109.
- 25. *Okamoto H.* Fe-Pb (Iron-Lead) // J. Ph. Equilibria Diffus. 2012. V. 33. P. 419–420. https://doi.org/10.1007/s11669-012-0078-0.
- 26. *Burton B*. The Fe-Pb (Iron-Lead) system // JPE. 1991. –V. 12. P. 200–202. https://doi.org/10.1007/BF02645714.
- 27. *Vaajamo I.* A thermodynamic assessment of the iron-lead binary system / I. Vaajamo, P. Taskinen // Thermochim. Acta. 2011. V. 524. P. 56–61. https://doi.org/10.1016/j.tca.2011.06.014.
- 28. Elliott R.P. Constitution of Binary Alloys. New York: McGraw-Hill, 1965.
- 29. Hansen M. Constitution of Binary Alloys. New York: McGraw-Hill, 1958.
- 30. *Venkatraman M.* The Cr–Pb (Chromium-Lead) system / M. Venkatraman, J.P. Neumann // JPE. 1988. V. 9. P. 155–157. https://doi.org/10.1007/BF02890554.
- 31. *Onderka B.* Thermodyanmic properties and phase equilibria in the ternary Cu-Pb-Fe system / B. Onderka, D. Jendrzejczyk-Handzlik, K. Fitzner // Arch. Metall. Mater. 2013. V. 58. P. 541–548. https://doi.org/10.2478/amm-2013-0033.
- 32. *Nash P.* The Ni–Pb (Nickel-Lead) system // Bull. Alloy Phase Diagr. 1987. V. 8. P. 264–268. https://doi.org/10.1007/BF02874918.
- 33. *Okamoto H.* Supplemental Literature Review of Binary Phase Diagrams: Al-Bi, Al-Dy, Al-Gd, Al-Tb, C-Mn, Co-Ga, Cr-Hf, Cr-Na, Er-H, Er-Zr, H-Zr, and Ni-Pb // J. Ph. Equilibria Diffus. 2014. V. 35. P. 343–354. https://doi.org/10.1007/s11669-014-0300-3.
- 34. *Okamoto H.* Supplemental Literature Review of Binary Phase Diagrams: Al-P, B-Ga, B-Nd, Ba-Ga, Bi-Cs, Ca-Ga, Cd-Gd, Cr-Mo, Gd-Ni, Ni-Pb, Ni-Sc, and Sc-Sn // J. Ph. Equilibria Diffus. 2015. V. 36. P. 518–530. https://doi.org/10.1007/s11669-015-0395-1.
- 35. *Kainulainen I.* A thermodynamic assessment of the nickel-lead system / I. Kainulainen, P. Taskinen, J. Gisby // Calphad. 2010. V. 34. P. 441–445. https://doi.org/10.1016/j.calphad.2010.08.001.
- 36. *Vaajamo I.* A solubility study and thermodynamic description of the system Fe–Ni–Pb / I. Vaajamo, P. Taskinen, J.A. Gisby // Calphad. 2013. V. 42. P. 66–75. https://doi.org/10.1016/j.calphad.2013.06.004.
- 37. The ternary bismuth-iron-antimony system: Experimental phase diagram study and

- thermodynamic evaluation / D. Boa, S. Hassam, G. Krac, K.P. Kotchi, J. Rogez // Calphad. 2008. V. 32. P. 227–239. https://doi.org/10.1016/j.calphad.2008.01.001.
- 38. Experimental investigation and thermodynamic calculation of the Fe–Si–Bi system / Z. Zhu, Y. Liu, C. Wu, H. Peng, J. Wang, X. Su // Calphad. 2020. V. 70. Art. 101767. https://doi.org/10.1016/j.calphad.2020.101767.
- 39. *Shunk F.A.* Constitution of Binary Alloys, Second Supplement. New York: McGraw-Hill, 1969.
- 40. *Venkatraman M.* The Bi-Cr (Bismuth-Chromium) system / M. Venkatraman, J.P. Neumann // Bull. Alloy Phase Diagr. 1988. V.9. P. 271–273. https://doi.org/10.1007/BF02881279.
- 41. *Vassilev G.P.* Experimental studies and thermodynamic optimization of the Ni-Bi system / G.P. Vassilev, X.J. Liu, K. Ishida // J. Ph. Equilibria Diffus. 2005. V. 26. P. 161–168. https://doi.org/10.1007/s11669-005-0134-0.
- 42. *Nash P.* The Bi–Ni (Bismuth-Nickel) system // Bull. Alloy Phase Diagr. 1985. V. 6. P. 345–347. https://doi.org/10.1007/BF02880519.
- 43. Thermodynamic investigations of Bi–Ni system–Part I / P. Samui, R. Agarwal, A. Padhi, S.G. Kulkarni // J. Chem. Thermodyn. 2013. V. 57. P. 470–476. https://doi.org/10.1016/j.jct.2012.09.024.
- 44. *Agarwal R.* Thermodynamic investigations of (Bi-Ni) system–Part II, / R. Agarwal, P. Samui, S. G. Kulkarni // J. Chem. Thermodyn. 2013. V. 57. P. 477–484. https://doi.org/10.1016/j.jct.2012.09.010.
- 45. *Vassilev G.* Comments and reconciliation of the Ni–Bi-system thermodynamic reassessments / G. Vassilev, V. Gandova, P. Docheva // Cryst. Res. Technol. 2009. V. 44. P. 25–30. https://doi.org/10.1002/crat.200800391.
- 46. Thermodynamic optimization of Bi-Ni binary system / W. Jiang, F. G. Meng, L. B. Liu, Z. P. Jin / Trans. Nonferrous Met. Soc. China. 2011. V. 21(1). P. 139–145. https://doi.org/10.1016/S1003-6326(11)60690-0.
- 47. *Okamoto H.* Bi-Ni (Bismuth-Nickel) // J. Ph. Equilibria Diffus. 2012. V. 33. P. 492. https://doi.org/10.1007/s11669-012-0091-3.
- 48. Fleischer B. The solubility of Iron–nickel alloys in liquid lead: 700–1100 °C / B. Fleischer, J.F. Elliot // The Physical Chemistry of Metallic Solutions and Intermetallic Compounds (Symposium No. 9, Paper 2F). 1959. V. 1. P. 1–12.
- 49. Experimental investigation and thermodynamic calculations of the Bi-Ni-Pb phase diagram / D. Minic, M. Premovic, N. Tosskovic, D. Manasijevic, V. Cosovic, M. Janackovic, M. Tomovic // J. Min. Metall. B Metall. 2019. V. 55(2). P. 157–166. https://doi.org/10.2298/JMMB181128024M.
- 50. Handbook on Lead-Bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Materials Compatibility, Thermal-Hydraulics and Technologies / C. Fazio, V. Sobolev, A. Aerts, S. Gavrilov, K. Lambrinou, P. Schuurmans, A. Gessi, P. Agostini, A. Ciampichetti, L. Martinelli. Organisation for Economic Co-Operation and Development, 2015.
- 51. Экспериментальное исследование высокотемпературного взаимодействия стали со свинцовым теплоносителем / В. И. Альмяшев, В. Б. Хабенский, Е.В. Крушинов [и др.] // Теплофизика высоких температур. 2021. Т. 59, № 5. С. 762—769. DOI 10.31857/S004036442105001X.
- 52. Экспериментальное исследование взаимодействия свинцово-висмутового теплоносителя со сталью оболочек твэлов / В. И. Альмяшев, А. А. Сулацкий, С.А. Витоль

- [и др.] // ВАНТ. Серия: Ядерно-реакторные константы. 2022. № 2. С. 89–101.
- 53. X-ray and density studies of nonstoichiometric uranium sesquinitride / H. Tagawa, N. Masaki // J. Inorg. Nucl. Chem. 1974. V. 36. P. 1099–1103. https://doi.org/10.1016/0022-1902(74)80220-4.
- 54. *Tagawa H*. Phase relations and thermodynamic properties of the uranium-nitrogen system // J. Nucl. Mater. 1974. V. 51. P. 78–89. https://doi.org/10.1016/0022-3115(74)90117-2.
- 55. *Левинский Ю.В.* Р-Т-х-диаграммы состояния двойных металлических систем. Методы расчета и построения. М.: Металлургия, 1990.
- 56. Высокотемпературное ядерное топливо / Р.Б. Котельников [и др.]. М.: Атомиздат, 1978. С. 35–39.
- 57. *Алексеев С.В.* Нитридное топливо для атомной энергетики / С.В. Алексеев, В.А. Зайцев. М.: Техносфера, 2013.
- 58. Алексеев С.В. Дисперсионное ядерное топливо / С.В. Алексеев, В.А. Зайцев, С. Толстоухов. М.: Техносфера, 2015.
- 59. *Nunez U.C.* Melting point determination of uranium nitride and uranium plutonium nitride: A laser heating study / U.C. Nunez, D. Prieur, R. Bohler, D. Manara // Journal of Nuclear Materials. 2014. V. 449(1-3). P. 1–8. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.02.021.
- 60. *Okamoto H.* N-U (Nitrogen-Uranium) // JPE. 1997. V.18. P. 107. https://doi.org/10.1007/BF02646768.
- 61. *Chavalier P.-Y.* Thermodynamic modelling of the U-N system / P.-Y. Chavalier, E. Fisher, B. Cheynet // J. Nucl. Mater. 2000. V. 280. 136–150. https://doi.org/10.1016/S0022-3115(00)00043-X.
- 62. *Казенас Е.К.* Термодинамика испарения нитридов / Е.К. Казенас Е., Ю.В. Цветков. М: РАН, 2021.
- 63. *Konings R.J.M.* Nuclear Fuels / R.J.M. Konings, T. Wiss, C. Guéneau // The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements / Eds: L.R. Morss, N.M. Edelstein, J. Fuger. Springer; Dordrecht, 2010. https://doi.org/10.1007/978-94-007-0211-0 34.
- 64. *Hayes S.L.* Material property correlations for uranium mononitride: IV. Thermodynamic properties / S.L. Hayes, J.K. Thomas, K.L. Peddicord // J. Nucl. Mater. 1990. V. 171(2-3). P. 300–318. https://doi.org/10.1016/0022-3115(90)90377-Y.
- 65. Thermochemical Stability, Radiation Testing, Fabrication, and Reprocessing of Mononitride Fuel / B.D. Rogozkin, N.M. Stepennova, G.A. Bergman, A.A. Proshkin // Atomic Energy. 2003. V. 95. P. 835–844. https://doi.org/10.1023/B:ATEN.0000018996.79185.bc.
- 66. *Михальчик В.В.* Термохимическая стабильность модельного нитридного ядерного топлива на основе урана: дисс. ... канд. техн. наук. -2019.-137 с.
- 67. Thermal stability investigation technique for uranium nitride / V.G. Baranov, A.V. Tenishev, R.S. Kuzmin, S.A. Pokrovskiy, E.S. Solntseva // Ann. Nucl. Energy. 2016. V. 87. P. 784–792. https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.09.023.
- 68. High temperature uranium nitride decomposition / V.V. Mikhalchk, A.V. Tenishev, V.G. Baranov, R.S. Kuzmin // Adv. Mat. Res. 2014. V. 1040. P. 47–52. https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.1040.47.
- 69. Kinetic and microstructural studies of thermal decomposition in uranium mononitride compacts subjected to heating in high-purity helium / A.V. Lunev, V.V. Mikhalchik,

- A.V. Tenishev, V.G. Baranov // J. Nucl. Mater. 2016. V. 475. P. 266–273. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2016.04.018.
- 70. Modeling of Phase Separation in Uranium Mononitride / V.V. Mikhalchik, S.N. Nikitin, B.A. Tarasov, A.V. Tenishev, D.P. Shornikov // KnE Mater. Sci. 2018. V. 4(1). P. 103–108. https://doi.org/10.18502/kms.v4i1.2133.
- 71. Модель для расчета скорости диссоциации нитридного топлива при высоких температурах / Усов Э. В. [и др.] // Теплофизика высоких температур. 2020. Т. 58, № 2. С. 238–243.
- 72. Chemical Thermodynamics of Uranium / I. Grenthe, J. Fuger, R.J.M. Konings, R.J. Lemire, A.B. Muller, C.H. Nguyen-Trung; ed. by H. Wanner. Amsterdam etc.: North Holland, 1992.
- 73. *Konings R.J.M.* Thermodynamic Properties of Actinides and Actinide Compounds / R.J.M. Konings, L.R. Morss, J. Fuger // The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements / Eds: L.R. Morss, N.M. Edelstein, J. Fuger. Springer, Dordrecht. 2010. https://doi.org/10.1007/978-94-007-0211-0 19.
- 74. Study of the decomposition and phase transition of uranium nitride under UHV conditions via TDS, XRD, SEM, and XPS / X. Wang, Z. Long, R. Bin, R. Yang, Q. Pan, F. Li, L. Luo, Y. Hu, K. Liu // Inorg. Chem. 2016. V. 55. P. 10835–10838. https://doi.org/10.1021/acs.inorgchem.6b01260.
- 75. Reaction Sequence and Kinetics of Uranium Nitride Decomposition / C.G.W. Silva, C.B. Yeamans, A.P. Sattelberger, T. Hartmann, G.S. Cerefice, K.R. Czerwinski // Inorg. Chem. 2009. V. 48. P. 10635–10642. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.02.041.
- 76. Alexander C. Volatilization characteristics of uranium mononitride / C. Alexander, J. Ogden, W. Pardue // J. Nucl. Mater. 1969. V. 31(1). P. 13–24. https://doi.org/10.1016/0022-3115(69)90041-5.
- 77. Исследования смешанного нитридного уран-плутониевого топлива в рамках проекта «Прорыв» / Грачев А. Ф. [и др.] // Атомная энергия. 2017. Т. 122, № 3. С. 156—167.
- 78. Состояние нитридного топлива после облучения в быстрых реакторах / Крюков Ф. Н. [и др.] //Атомная энергия. 2012. Т. 112, № 6. С. 336–340.
- 79. *Рогозкин Б.Д*. Мононитридное топливо для быстрых реакторов / Б.Д. Рогозкин, Н.М. Степеннова, А.А. Прошкин // Атомная энергия. 2003. Т. 95, № 3. С. 208—221.
- 80. Результаты испытаний смешанного мононитридного топлива  $U_{0,55}$   $Pu_{0,45}$  N и  $U_{0,4}$   $Pu_{0,6}$  N в реакторе БОР-60 до выгорания 12% тяж. ат / Рогозкин Б. Д. [и др.] // Атомная энергия. − 2011. − Т. 110, № 6. − С. 332–345.
- 81. Teitel R.J. Lead-Uranium System // JOM. 1952. V. 4. P. 397–400. https://doi.org/10.1007/BF03397704.
- 82. *Sheldon R.I.* The Pb–U (Lead-Uranium) system / R.I. Sheldon, E.M. Foltyn, D.E. Peterson // Bull. Alloy Phase Diagr. 1987. V. 8. P. 536–541. https://doi.org/ 10.1007/ BF02879430.
- 83. *Li Z.* Thermodynamic modeling of the Pb-U and Pb-Pu systems / Z. Li, X. Liu, C. Wang // J. Nucl. Mater. 2010. V. 403. P. 1–6. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.02.002.
- 84. Critical Evaluation and Thermodynamic Optimization of the U-Pb and U-Sb Binary Systems / J. Wang, L.L. Jin, C.C. Chen, W.F. Rao, C.P. Wang, X.J. Liu // J. Nucl. Mater. 2016. V. 480. P. 216–222. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2016.08.030.

- 85. R. Agarwal Calorimetric investigations of UPb<sub>3</sub> compound / R. Agarwal, P. Samui, S.K. Mukerjee // Thermochim. Acta. 2016. V. 637. P. 110–119. https://doi.org/10.1016/j.tca.2016.05.012.
- 86. *Teitel R.J.* Uranium-bismuth system // JOM. 1957. V. 9. P. 131–136. https:// doi. org/10.1007/BF03398470.
- 87. Thermodynamic Assessments of the Bi-U and Bi-Mn Systems / C.P. Wang, W.J. Yu, Z.S. Li, X.J. Liu, A.T. Tang, F.S. Pan // J. Nucl. Mater. 2011. V. 412. P. 66–71. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2011.02.021.
- 88. Critical evaluation and thermodynamic optimization of the (U+Bi), (U+Si) and (U+Sn) binary systems / J. Wang, K. Wang, C. Ma and L. Xie // J. Chem. Thermodyn. 2016. V. 92. P. 158–167. https://doi.org/10.1016/j.jct.2015.08.029.
- 89. *Agarwal R*. Understanding uranium interactions with bismuth and lead-bismuth eutectic: Using calorimetric measurements // Thermochim. Acta. 2021. V. 699. Art. 178913. https://doi.org/10.1016/j.tca.2021.178913/.
- 90. Послереакторные исследования твэлов с нитридным уран-плутониевым топливом с газовым и жидкометаллическим подслоем / Грачев А. Ф. [и др.] // Атомная энергия. -2020. Т. 129, № 6. С. 311–316.
- 91. The interaction between nitride uranium and stainless steel / D. P. Shornikov, S.N. Nikitin, B.F. Tarasov, V.G. Baranov, M.S. Yurlova // IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. 2016. V. 130. Art. 012037. https://doi.org/10.1088/1757-899X/130/1/012037.
- 92. *Bauer A.A.* Nitride fuels: properties and potentials // Reactor Technol. 1972. V. 15. P. 87–104.
- 93. *Price D.E.* The Compatibility of Uranium Nitride with Potential Cladding Metals / D.E. Price, D.P. Moak // Trans. Amer. Nucl. Soc. 1966. V. 9. P. 418.
- 94. *Tomashik V.* Iron-Nitrogen-Uranium // Landolt-Börnstein New Series IV/11D4 / eds.: G. Effenberg, S. Ilyenko. 2008. https://doi.org/10.1007/978-3-540-78644-3\_33.
- 95. *Guha J.P.* Phase Equilibrium Relationships in the System UN-UC-Fe / J. Nucl. Mater. 1971. V. 41. P. 187–194. https://doi.org/10.1016/0022-3115(71)90079-1.
- 96. *Imoto S*. Thermodynamics Applied to Compatibility of UN with Ni, Cr and Fe / S. Imoto, S. Namba // J. Nucl. Mater. 1974. V. 51. P. 106–111. https://doi.org/10.1016/0022-3115(74)90120-2.
- 97. *Guha J. P.* Phase relationships in the ternary system U-Ni-N // J. Nucl. Mater. 1972. V. 45(73). P. 40–46. https://doi.org/10.1016/0022-3115(72)90110-9.
- 98. Reaction of nickel with uranium mononitride [in French] / F. Anselin, D. Calais, N. Lorenzelli, J.C. Passefort. CEA Fontenay-aux-Roses, No. CEA-R-2762. France, 1965.
- 99. Design and fabrication of UN composites: From first principles to pellet production / Y. Mishchenko, K.D. Johnson, J. Wallenius, D.A. Lopes // J. Nucl. Mater. 2021. V. 553. Art. 153047. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2021.153047.
- 100. Potential accident tolerant fuel candidate: investigation of physical properties of the ternary phase U<sub>2</sub>CrN<sub>3</sub> / Y. Mishchenko, S. Patnaik, E. Charatsidou, J. Wallenius, D.A. Lopes // J. Nucl. Mater. 2022. V. 568. Art. 153851. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2022.153851.
- 101. Uranium nitride advanced fuel: an evaluation of the oxidation resistance of coated and doped grains / Y. Mishchenko, K. D. Johnson, D. Jädernäs, J. Wallenius, D.A. Lopes

- // J. Nucl. Mater. 2021. V. 556. Art. 153249. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat. 2021.153249.
- 102. Compatibility of UN with refractory metals (V, Nb, Ta, Cr, Mo and W): an ab initio approach to interface reactions and diffusion behavior / H. Liu, D.R. Costa, D.A. Lopes, A. Claisse, L. Messina, P. Olsson // J. Nucl. Mater. 2022. V. 560. Art. 153482. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2021.153482.
- 103. Interface interactions in UN-X-UO<sub>2</sub> systems (X=V, Nb, Ta, Cr, Mo, W) by pressure-assisted diffusion experiments at 1773 K / D.R. Costa, H. Liu, D.A. Lopes, S.C. Middleburgh, J. Wallenius, P. Olsson // J. Nucl. Mater. 2022. V. 561. Art. 153554. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2022.153554.
- 104. *Kurata M.* 2.05-Phase diagrams of actinide alloys // Comprehensive Nuclear Materials / R.J.M. Konings (Eds.). Oxford: Elsevier, 2012. P. 139–195.
- 105. Leibowitz L. Thermodynamics and Phase Equilibria of the Iron-Uranium System / L. Leibowitz, R.A. Blomquist // J. Nucl. Mater. 1991. V.184. P. 47–52. https://doi.org/10.1016/0022-3115(91)90531-B.
- 106. Thermodynamic assessment of the Fe-U binary system / S. Chatain, C. Guéneau, D. Labroche, O. Dugne, J. Rogez // JPE. 2003. V. 24. P. 122–131. https://doi.org/10.1361/105497103770330730.
- 107. *Rai A.K.* A calorimetric study of high temperature phase stability in Fe-U alloys / A.K. Rai, S. Raju, M. Vijayalakshmi // J. Nucl. Mater. 2012. V. 432. P. 520–528. –https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2012.08.042.
- 108. Interdiffusion and reaction between uranium and iron / K. Huang, Y. Park, A. Ewh, B.H. Sencer, J.R. Kennedy, K.R. Coffey, Y.H. Sohn // J. Nucl. Mater. 2012. V. 424. P. 82–88. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2012.02.004.
- 109. *Daane A.H.* Uranium-Chromium System / A.H. Daane, A.S. Wilson // JOM. 1995. V. 7. P. 1219–1220. https://doi.org/10.1007/BF03379031.
- 110. *Venkatraman M.* The Cr-U (Chromium-Uranium) system / M. Venkatraman, J.P. Neumann, D.E. Peterson // Bull. Alloy Phase Diagr. 1985. V. 6. P. 425–429. https://doi.org/10.1007/BF02869502.
- 111. Calphad thermodynamic description of some binary systems involving U / A. Berche, N. Dupin, C. Guéneau, C. Rado, B. Sundman, J.C. Dumas // J. Nucl. Mater. 2011. V. 411. P. 131–143. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2011.01.043.
- 112. *Okamoto H.* Cr-U (Chromium-Uranium) // Dif 2012. V. 33. P. 495. https://doi.org/10.1007/s11669-012-0093-1.
- 113. *Peterson D.E.* The Ni–U (Nickel-Uranium) system // Bull. Alloy Phase Diagr. 1988. V. 9. P. 490–493. https://doi.org/10.1007/BF02881874.
- 114. Thermodynamic Assessments of the U-Ni and Th-Ni Systems / C.P. Wang, Y. He, H.L. Zhang, X.J. Liu // J. Alloys. Compd. 2009. V. 487. P. 126–131. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2009.07.168.
- 115. *Okamoto H.* Supplemental Literature Review of Binary Phase Diagrams: Ag-Te, B-Mo, C-Nd, Cd-Te, Ce-S, Co-Er, Fe-La, Fe-V, Ho-Mo, Ho-V, Ni-Th, and Ni-U// J. Ph. Equilibria Diffus. 2018. V. 39. P. 953–965. https://doi.org/10.1007/s11669-018-0669-5.
- 116. Effects of Cr and Ni on interdiffusion and reaction between U and Fe-Cr-Ni alloys / K. Huang, Y. Park, L. Zhou, K. Coffey, Y. Sohn, B. Sencer, J. Kennedy // J. Nucl. Mater. 2014. V. 451. P. 372–378. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.04.009.

- 117. Thermodynamics of the Fe-N and Fe-N-C Systems: The Fe-N and Fe-N-C Phase Diagrams Revisited / H. Göhring, O. Fabrichnaya, A. Leineweber, E.J. Mittemeijer // Metall Mater Trans A. 2016. V. 47. P. 6173–6186. https://doi.org/10.1007/ s11661-016-3731-0.
- 118. *Frisk K*. A thermodynamic evaluation of the Cr-N, Fe-N, Mo-N and Cr-Mo-N systems // Calphad. 1990. V.15. P. 79–106. https://doi.org/10.1016/0364-5916(91) 90028-I.
- 119. *Fonović M.* Experimental Investigation and Thermodynamic Modeling of the Ni-Rich Part of the Ni-N Phase Diagram / M. Fonović, A. Leineweber, E.J. Mittemeijer // Metall Mater Trans A. 2014. V. 45. P. 4863–4874. https://doi.org/10.1007/ s11661-014-2440-9.
- 120. *Raghavan V.* The Cr-Fe-N-Ni System (Chromium-Iron-Nitrogen-Nickel) // JPE. 1997. V. 18. P. 158–172. https://doi.org/10.1007/BF02665700.
- 121. Perrot P. Chromium-Iron-Nitrogen // Landolt Börnstein New Series IV/11D3 / eds.: G. Effenberg, S. Ilyenko. 2008. https://doi.org/10.1007/978-3-540-74199-2\_10.
- 122. Cr-Fe-N (Chromium-Iron-Nitrogen) / Scientific Group Thermodata Europe (SGTE) // Landolt Börnstein New Series IV/19C1 / eds.: P. Franke, H.J. Seifert. 2012. https://doi.org/10.1007/978-3-540-88142-1 87.
- 123. Perrot P.G. Iron-Nitrogen-Nickel // Landolt Börnstein New Series IV/11D4 / eds.: G. Effenberg, S. Ilyenko. 2008. https://doi.org/10.1007/978-3-540-78644-3 30.

## 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 эксплуатании 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 <a href="www.niti.ru">www.niti.ru</a> 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 A4 (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 03.11.2023. Бумага офсетная. Гарнитура Таймс. Печать цифровая. Формат  $60\times90/8$ . Усл.-печ. л.11,75. Заказ 49567. 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