

## ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

# Установка для нагревания образцов ядерного топлива до температуры выше 2000 °С во вне реакторных экспериментах

М.Т. Жараспаев, Д.С. Ким, Р.Е. Жумагулова

*Мировой опыт исследований в области безопасного использования атомной энергии свидетельствует о том, что реакторные испытания различных образцов ядерного топлива (смешанного, с низкой степенью обогащения, регенерированного и т.д.) связаны с достаточно крупными затратами и более высокой степенью радиационного риска по сравнению с экспериментами, проводимыми вне реактора. Представлена схема установки, позволяющей проводить исследования с ядерным топливом во вне реакторных условиях.*

PACS numbers: 28.41.Bm, 52.50.Jm, 88.40.me

DOI: 10.3367/UFNr.0182.201206d.0645

## Содержание

1. Введение (645).
  2. Преимущества лазерного нагрева топлива до температуры выше 2000 °С (645).
  3. Установка с лазерным испарением (646).  
3.1. Принцип работы. 3.2. Цель нагрева образцов ядерного топлива до температуры более 2000 °С.
  4. Определение газового давления испарённого материала мишени (647).
  5. Определение температуры испарения мишени (647).
  6. Заключение (648).
- Список литературы (648).

## 1. Введение

Результаты исследований ядерных аварий на реакторных установках показывают, что основной причиной разгерметизации защитной оболочки реактора и попадания выбросов, загрязнённых продуктами деления ядерного топлива, в окружающую среду служит повышение газового давления в активной зоне. На повышение газового давления в облучённом ядерном топливе (диоксиде урана  $UO_2$  различной степени обогащения, смешанном уран-плутониевом топливе и т.д.) главным образом

влияют в температурной области ниже точки плавления ( $\approx 1800$  °С) газообразные и летучие продукты деления, а в температурной области выше 2000 °С — сам топливный материал и менее летучие продукты деления [1].

Для анализа распространения повреждения в отдельном тепловыделяющем элементе (ТВЭЛе) активной зоны необходимо знать термодинамические соотношения между переменными. Термодинамические соотношения в пределах замкнутой системы зависят от пространственного положения продуктов деления. Для гипотетической аварии, в которой большая часть активной зоны реактора становится расплавленной, уместно использовать термодинамические соотношения для изотермической гомогенной массы.

На сегодняшний день существует несколько методов экспериментального определения теплового и термического уравнений состояния материалов ядерного топлива и продуктов деления при температурах до 2000 °С.

## 2. Преимущества лазерного нагрева топлива до температуры выше 2000 °С

При нагреве ядерного топлива выше 2000 °С для измерения температуры равновесия системы пар–жидкость применяются методы открытого испарения. Нагрев электронным лучом использовать нельзя, так как взаимодействие электронного луча с газовым облаком над мишенью повлияет на скорость испарения и реакционное давление газового облака, вследствие чего результаты измерения температуры будут искажены. Кроме того, большая глубина проникновения электронного луча приведёт к неопределённому взрывоподобному испарению.

Нагрев лазерным лучом представляет собой подходящий способ испарения образцов ядерного топлива при температуре выше 2000 °С. Он позволяет проводить измерения параметров термического равновесия путём определения скорости испарения материала мишени и газового давления.

**М.Т. Жараспаев.** Казахский национальный технический университет им. К.И. Сатпаева,

ул. Сатпаева 22, 050013 г. Алматы, Республика Казахстан  
Тел. (727) 257-70-87. E-mail: zharaspaev.41@mail.ru

**Д.С. Ким.** Институт ядерной физики  
Национального ядерного центра Республики Казахстан,  
ул. Ибрагимова 1, 050032 г. Алматы, Республика Казахстан  
Тел. (727) 386-68-00. Факс (727) 386-52-60. E-mail: kim2@inp.kz

**Р.Е. Жумагулова.** Международная образовательная корпорация,  
ул. Рыскулбекова 28, 050043 г. Алматы, Республика Казахстан  
Тел. (727) 309-63-22. E-mail: roza\_j@mail.ru

Статья поступила 25 августа 2011 г.,  
после доработки 3 октября 2011 г.

Измерения газового давления в области над ядерным топливом с применением лазерного нагрева приводят к сильным изменениям в составе неравномерно испаряющейся поверхности. Поверхность, обеднённая испаряющимися компонентами, во время открытого испарения не может быть восстановлена за счёт диффузии из объёма материала.

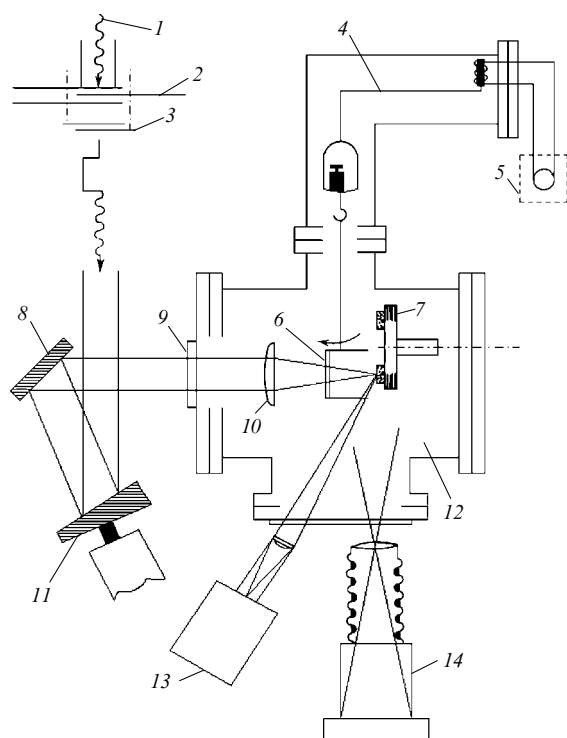
При нагревании образцов ядерного топлива лазерным лучом после небольшого переходного периода испарения процесс испарения поверхности становится стационарным. При этом состав поверхности сильно отличается от исходного состава топлива и зависит от фактической температуры испарения. Когда наступает такое стационарное вынужденное равномерное испарение, общий состав газа становится вполне определённым и идентичным изотопному составу топлива, который существенно отличается от фактического состава нагреваемой поверхности.

### 3. Установка с лазерным испарением

На рисунке 1 изображена принципиальная схема установки с лазерным испарением, позволяющей нагревать образцы ядерного топлива до температуры выше  $2000^{\circ}\text{C}$ .

#### 3.1. Принцип работы

Лазерный пучок 1 (см. рис. 1), источником которого служит слабоионизованный тлеющий электрический разрядом и нагретый до состояния плазмы диоксид



**Рис. 1.** Принципиальная схема установки с лазерным испарением образцов ядерного топлива при температуре выше  $2000^{\circ}\text{C}$ : 1 — пучок  $\text{CO}_2$ -лазера, 2 — плазменный прерыватель, 3 — затвор, 4 — вакуумные весы, 5 — компенсационная цепь, 6 — баллистический коллектор с окном для пучка, 7 — поворотный стол для мишеней, 8 — неподвижное зеркало, 9 — окно для пучка, 10 — линза, 11 — подвижное зеркало, 12 — вакуумная камера, 13 — быстродействующий микропирометр для измерения температуры в фокусном пятне испарения, 14 — камера для наблюдения за струей газа.

углерода ( $\text{CO}_2$ ), испускается в инфракрасном диапазоне с длиной волны порядка  $10,5\ \mu\text{м}$  и мощностью около  $200\ \text{МВт}$ . Для уменьшения высокой амплитуды импульса, подаваемого на электроды плазменных инжекторов поверхностного разряда при сохранении плотности и объёма создаваемой ими плазмы, используется плазменный прерыватель тока 2. Он содержит источник импульса тока, подключённый к двум протяжённым электродам. Электроды разделены изолятором, совместно с которым образуют вакуумный межэлектродный промежуток и нагрузку в виде вакуумного или плазменного диода, подключённую к электродам. На одном из электродов расположен по меньшей мере один плазменный инжектор.

Чтобы иметь возможность изменять угол фокусирования лазерного пучка на образце ядерного топлива в зависимости от целей и условий различных экспериментов, применена следующая схема: пучок 1, проходя через задвижку 3, не попадает напрямую в вакуумную камеру 12, а претерпевает двойное отражение от системы зеркал 8 и 11. Мощность пучка преломлённых лучей, поступающих сквозь окно 9 в вакуумную камеру 12, увеличивается с помощью собирающей линзы 10, фокусное расстояние и оптическая сила которой могут настраиваться в зависимости от того, до какой температуры требуется нагреть образец ядерного топлива, зафиксированный на поворотном столе 7. Образец локально нагревается пучком через баллистический коллектор 6 и при температуре выше  $2000^{\circ}\text{C}$  переходит в жидкое состояние. В результате вращения зеркала 11 точка фокусировки лазера во время импульса равномерно перемещается по круговой траектории на поверхности образца, что приводит к испарению относительно большого количества жидкого материала мишени.

В результате испарения жидкого ядерного материала в вакуумной камере 12 происходит термическое разложение образца и абсорбция газов. Для измерения газового давления при испарении ядерного топлива при температуре выше  $2000^{\circ}\text{C}$ , скорости испарения и определения газопроницаемости среды над нагретым топливом в установке используются точные вакуумные термовесы 4 с кварцевой спиралью чувствительностью около  $1\ \text{мг}\ \text{мм}^{-1}$  (деформация спирали регистрируется с помощью катетометра с точностью до  $0,01\ \text{мм}$ ). Поскольку вакуумные весы 4 работают от источника тока (генератора), имеющего параллельное подключение к генератору лазера — реактивный ток с перенасыщенным возбуждением, а к другому генератору — ёмкостный ток). Для уменьшения возбуждения генератора с реактивной нагрузкой и увеличения возбуждения с ёмкостной нагрузкой таким образом, чтобы уравнивающий ток стал равным нулю, применяется компенсационная цепь 5.

#### 3.2. Цель нагрева образцов ядерного топлива до температуры более $2000^{\circ}\text{C}$

Целью экспериментов по нагреванию образцов ядерного топлива до температуры выше  $2000^{\circ}\text{C}$  является определение следующих показателей:

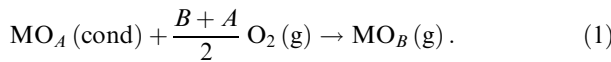
- времени и площади испарения;
- массы образовавшегося газа;
- момента выхода струи газа, который измеряется по амплитуде отклонения маятникового коллектора, установленного в камере для наблюдения за струей газа 14;
- спектрального теплового излучения поверхности испарения, которое измеряется быстродействующим

микропирометром 13, позволяющим определить температуру испарения топливного образца с помощью измерения спектральной эмиссионной способности жидкого топлива.

Микропирометр 13 используется для дистанционно-го измерения температуры газа в вакуумной камере 12, поскольку физическое взаимодействие со средой невозможно из-за высокой температуры. В случаях, когда необходимо не измерить мощность теплового излучения, а определить радиоизотопный состав газа, образовавшегося в результате испарения образца ядерного топлива, вместо микропирометра 13 можно использовать спектрометр.

#### 4. Определение газового давления испарённого материала мишени

Газовое давление среды над нагретой мишенью определяется из механически измеряемых величин. Давление газа является одним из факторов, которые влияют на перемещение топлива и теплоносителя на ранних стадиях аварии активной зоны ядерного реактора: присутствие газа позволяет смешиваться большим количествам топлива и теплоносителя. Из-за различий в значениях ускорений топлива и теплоносителя, обусловленных присутствием продуктов деления в теплоносителе, образуются осколочные продукты деления. Осколочная активность имеет слабое влияние на распространение ядерной аварии, но является важным фактором в процессе перемешивания топлива и теплоносителя. Равновесное давление пара газообразного компонента  $MO_B(g)$ , испаряющегося с твёрдого или жидкого окисла металла  $MO_A(cond)$ , можно рассчитать по реакции испарения [2]:



Здесь  $MO$  — оксид металла,  $A, B$  — стехиометрические коэффициенты оксидов различных металлов,  $(g)$  — газообразное состояние,  $(cond)$  — конденсированное (жидкое) состояние.

Реакция (1) включает также испарение чистых металлов ( $A = B = 0$ ). Для термодинамического равновесия закон действующих масс даёт [2]

$$\Delta G_T(MO_B) - \Delta G_T(MO_A) + RT \ln \left[ -\frac{p_{MO_B}}{a_{MO_A} p_{O_2}^{(B-A)/2}} \right] = 0$$

или после замены  $RT \ln p_{O_2} = \Delta \bar{G}_{O_2}$ :

$$\ln p_{MO_B} = \ln a_{MO_A} + \frac{1}{RT \ln 10} \left[ \Delta G_T(MO_A) - \Delta G_T(MO_B) + \frac{B-A}{2} \Delta \bar{G}_{O_2} \right], \quad (2)$$

где  $p_{O_2}$  — давление кислорода,  $p_{MO_B}$  — давление пара газообразного окисла металла  $MO_B$ ,  $a_{MO_A}$  — активность (испаряющегося) конденсированного окисла  $MO_A$ ,  $\Delta G_T(MO_A)$  — свободная энтальпия образования конденсированного окисла  $MO_A$  при температуре  $T$ ,  $\Delta G_T(MO_B)$  — свободная энтальпия образования газообразного окисла  $MO_B$  при температуре  $T$ ,  $\Delta \bar{G}_{O_2}$  — кислородный потенциал окисной системы,  $R$  — универсальная газовая постоянная,  $R = 8,314 \text{ Дж моль}^{-1} \text{ К}^{-1}$ .

Давление газообразного компонента топлива можно рассчитать, если известны термодинамические величины в правой части уравнения (2).

#### 5. Определение температуры испарения мишени

Температура испарения в первом приближении определяется по моменту выхода струи газа с нагреваемой поверхности с использованием законов газовой динамики по расширению газа топлива в вакууме. На рисунке 2 [3, 4] приведены графики зависимости  $\ln p$  от  $T$ , полученные в результате экспериментов с диоксидом урана  $UO_2$ , где  $p$  — давление газа в среде над нагретым топливом. Несмотря на разброс данных, обусловленный главным образом дефектами в материале, можно отметить небольшое искривление прямой в область более высоких давлений при повышенных температурах.

Высокая скорость испарения при экстремально больших температурах приводит к изменению состава поверхностного слоя, который не успевает восстанавливаться за счёт диффузии. Это изменение обуславливает вынужденное равномерное испарение, при котором состав пара не отличается от состава топлива. Была выполнена подгонка экспериментальных точек кривой вынужденного равномерного испарения 1 (см. рис. 2). Затем кривая 1 была нормирована для отношения  $O/U = 2,00$ , таким образом получена кривая 2.

При подгонке предполагалось термодинамическое равновесие, применялись расчёты Рэнда – Брейтунга [3, 4] и учитывалась предельная погрешность определения различных свободных энергий образования осколочных продуктов, предложенная Рэндом [5]. В результате нормированная кривая 2 почти полностью согласуется с исходными данными, полученными в температурной области от 4400 до 4700 К [6, 7].

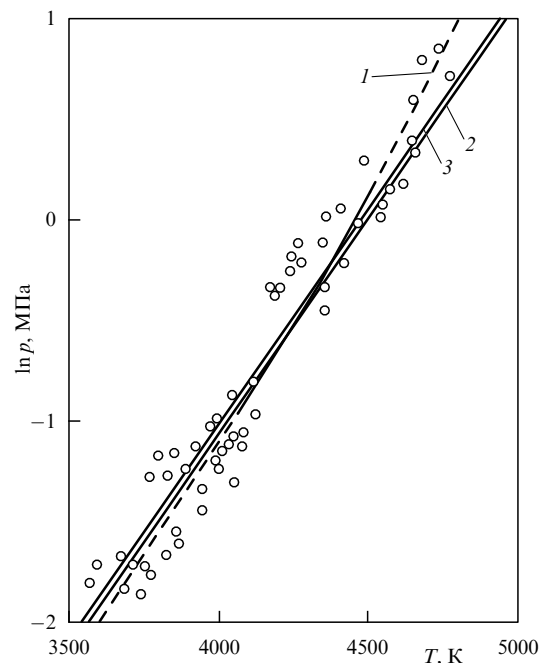


Рис. 2. Анализ экспериментальных данных по общему давлению газа над жидким  $UO_2$  при различных температурах: 1 — машинная подгонка кривой вынужденного равномерного испарения к экспериментальным данным ( $\circ$ ) методом вариации входных термодинамических данных в пределах допустимого интервала ошибок, 2 — кривая вынужденного равномерного испарения, нормированная к отношению  $O/U = 2,00$ , 3 — кривая вынужденного равномерного испарения, построенная по уравнению состояния облучённого топлива  $UO_2$  (уравнению равновесия пар – жидкость).

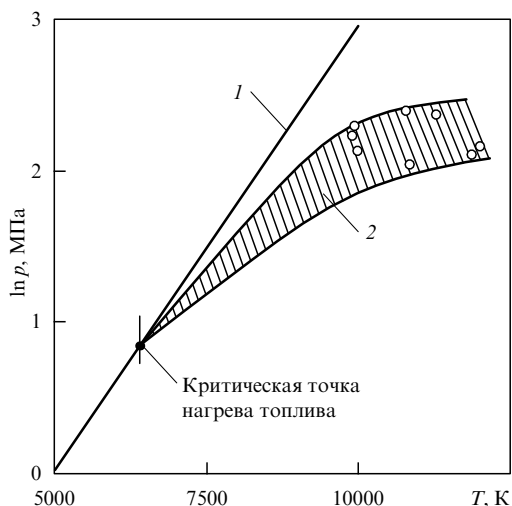


Рис. 3. Отклонение фактической зависимости  $p(T)$  от линейной: 1 — линейная зависимость, 2 — область фактического отклонения  $p(T)$  от линейной зависимости,  $\circ$  — экспериментальные данные [1, 8].

Определение отклонения зависимости давления от температуры нагрева  $p(T)$  от линейной зависимости необходимо для получения соотношений между результатами измерений давлений при температурах до 4700 К и областью возможных значений критической точки нагрева уран-плутониевого оксида.

В области нагрева ядерного топлива до 5000 К ожидается хорошее соответствие между термодинамическими данными, характером вынужденного равномерного испарения, результатами измерений давления ниже точки плавления и теплотой плавления. Однако при температурах 5000 К и бóльших высокая точность определения отклонения фактической зависимости  $p(T)$  от линейной зависимости, необходимая для экстраполяции данных до критической точки, не может быть достигнута (рис. 3). Как показывает рис. 3, при нагревании ядерного топлива до температуры выше критической точки газовое давление среды над топливом изменяется при повышении температуры не линейно, а параболически. Для  $\text{UO}_2$  можно вывести следующее конечное уравнение [1, 8]:

$$\ln p [\text{МПа}] = 0,770 \pm 0,013 - \frac{2790 \pm 52}{T}, \quad (3)$$

$$\Delta H = 533,4 \pm 9,0 \text{ кДж моль}^{-1}.$$

#### A facility for the out-of-pile heating of nuclear fuel samples to above 2000 °C

**M.T. Zharaspaev.** *Kazakh National Technical University named after K.I. Satpayev, Satpayev Str. 22, 050013 Almaty, Republic of Kazakhstan. Tel. (727) 257 70 87. E-mail: zharaspaev.41@mail.ru*

**D.S. Kim.** *Institute of Nuclear Physics of the National Nuclear Center, Republic of Kazakhstan, Ibragimov Str. 1, 050032 Almaty, Republic of Kazakhstan. Tel. (727) 386 68 00. Fax (727) 386 52 60. E-mail: kim2@inp.kz*

**R.E. Zhumagulova.** *International Education Corporation, Ryskulbekov Str. 28, 050043 Almaty, Republic of Kazakhstan Tel. (727) 309 63 22. E-mail: roza\_j@mail.ru*

International experience in nuclear energy safety issues shows that the in-pile tests of samples of various kinds of fuels (mixed, low-enriched, regenerated etc.) involve considerable expenditure and present a higher radiation risk compared to out-of-pile experiments. The paper outlines a facility that allows the out-of-pile investigation of nuclear fuels.

PACS numbers:

DOI: 10.3367/UFNr.0182.201206d.0645

Bibliography — 9 references

Received 25 August 2011, revised 3 October 2011

*Uspekhi Fizicheskikh Nauk* **182** (6) 645–648 (2012)

*Physics – Uspekhi* **55** (6) (2012)

Во втором приближении температура испарения топливного образца определяется путём измерения спектральной эмиссионной способности жидкого топлива с помощью лазерного интегрирующего сферического рефлектометра.

#### 6. Заключение

Разработки по проведению экспериментов с образцами ядерного топлива во внеакторных условиях осуществляются в разных странах мира уже достаточно давно и успешно. Так, например, в Институте общей физики им. А.М. Прохорова и в Институте теплофизики экстремальных состояний Российской академии наук эксперименты по исследованию испаряемости ядерного топлива в широком диапазоне давлений и температур проводятся на оригинальных лазерных установках, принцип работы которых в целом аналогичен описанному в настоящей статье. Наиболее близким по техническим решениям к предлагаемой авторами установке является устройство нагрева образцов ядерного топлива лазерным лучом в вакуумной камере [9].

Установка, описанная в настоящей статье, отличается тем, что лазерный луч проходит через систему двух зеркал, одно из которых подвижное, и собирающую линзу, а затем попадает в вакуумную камеру. Это приводит к более равномерному нагреву образцов ядерного топлива, что, в свою очередь, должно уменьшить погрешность измерения данных термического равновесия, основанного на определении скорости испарения материала мишени.

#### Список литературы

- Gabelnick S D, Chasanov M G “A calculation approach to the estimation of fuel and fission-product vapor pressures and oxidation states to 6000 K”, Technical Report ANL-7867 (Los Alamos: Argonne National Lab., 1972)
- Rand M H, Markin T L, in *Thermodynamics of Nuclear Materials* (Vienna: IAEA, 1987) p. 37
- Korshunov Yu S et al. *J. Eng. Phys. Thermophys.* **44** 438 (1983)
- Sorensen O T, in *Proc. of the 3rd Intern. Conf. on Thermal Analysis, Davos, 2001*, p. 224
- Schmitz F J. *Nucl. Mater.* **58** 357 (1975)
- Bober M, Schumacher G, in *Advances of Nuclear Science and Technology* Vol. 7 (New York: Academic Press, 2003) p. 197
- Kleykamp H, in *Behavior and Chemical State of Irradiated Ceramic Fuels* (Vienna: IAEA, 2004) p. 157
- D’Annunci P, Sari C, Schumacher G *Nucl. Technol.* **35** 80 (1977)
- Дубинов А Е и др., Патент РФ № 2165684, 20.04.2001; *Бюлл. изобрет.* (4) (2001)