ISSN 1729-7516

Вестник НЯЦ РК

ПЕРИОДИЧЕСКИЙ НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ
НАЦИОНАЛЬНОГО ЯДЕРНОГО ЦЕНТРА РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН

Издается с января 2000 г.

АТОМНАЯ ЭНЕРГЕТИКА И БЕЗОПАСНОСТЬ АЭС.
ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И РАДИАЦИОННОЕ МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ

ВЫПУСК 4, ДЕКАБРЬ 2003

ГЛАВНЫЙ РЕДАКТОР – к.т.н. ТУХВАТУЛИН Ш.Т.

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ: д.т.н. АРЗУМАНОВ А.А., БЕЛЯШОВА Н.Н.,
к.т.н. ГИЛЬМАНОВ Д.Г., д.ф.-м.н. ЖОТАБАЕВ Ж.Р. – **заместитель главного редактора**,
д.г.-м.н. ЕРГАЛИЕВ Г.Х., д.ф.-м.н. КАДЫРЖАНОВ К.К., КОНОВАЛОВ В.Е., к.ф.-м.н. МУКУШЕВА М.К.,
д.б.н. ПАНИН М.С., ПИВОВАРОВ О.С., ПТИЦКАЯ Л.Д., д.б.н. СЕЙСЕБАЕВ А.Т., к.ф.-м.н. СОЛОДУХИН В.П.,
д.ф.-м.н. ТАКИБАЕВ Ж.С. – **заместитель главного редактора**, д.ф.-м.н. ТАКИБАЕВ Н.Ж.

ҚР ҰЯО Жаршысы

АТОМ ЭНЕРГЕТИКАСЫ ЖӘНЕ АЭС ҚАУІПСІЗДІГІ.
ЯДРОЛЫҚ ФИЗИКА ЖӘНЕ РАДИАЦИЯЛЫҚ МАТЕРИАЛТАНУ

4 ШЫҒАРЫМ, ЖЕЛТОҚСАН, 2003 ЖЫЛ

NNC RK Bulletin

ATOMIC POWER ENGINEERING AND SAFETY OF ATOMIC POWER PLANTS.
NUCLEAR PHYSICS AND RADIATION MATERIAL STRUCTURE STUDY

ISSUE 4, DECEMBER 2003

СОДЕРЖАНИЕ

НЕОБХОДИМОСТЬ РАЗВИТИЯ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ В КАЗАХСТАНЕ И ВЫБОР МЕСТА СТРОИТЕЛЬСТВА АЭС 5
Такибаев Ж.С.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ LHI И АНАЛИЗ ОХЛАЖДАЕМОСТИ КОРИУМА ВНУТРИ СИЛОВОГО КОРПУСА РЕАКТОРА 8
Васильев Ю.С., Жданов В.С., Колодешников А.А., Маруяма Ю., Като М., Нагасака Х.

КОНЦЕПЦИЯ ЯДЕРНОГО РЕАКТОРА НА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНАХ С ПОЛНЫМ ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ УРАНОВОГО И ТОРИЕВОГО СЫРЬЯ 19
Котов В.М., Тихомиров Л.Н., Жумадилова Ж.А., Котов С.В.

ПОВЫШЕНИЕ ВНУТРЕННЕЙ ЗАЩИТЫ ИМПУЛЬСНОГО РЕАКТОРА ОТ ОШИБОЧНЫХ ИЛИ ПРОТИВОПРАВНЫХ ДЕЙСТВИЙ 28
Горин Н.В., Щербина А.Н.

КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕХАНИЗМА ТЕРМИЧЕСКОЙ СТАБИЛИЗАЦИИ СЛОИСТЫХ СИСТЕМ ЖЕЛЕЗО-БЕРИЛЛИЙ 32
Кадыржанов К.К., Туркебаев Т.Э., Русаков В.С., Плаксин Д.А., Жанкадамова А.М., Кислицин С.Б., Енсебаева М.З.

ИССЛЕДОВАНИЕ КОРРОЗИОННОЙ ПОВРЕЖДАЕМОСТИ АЛЮМИНИЕВОГО СПЛАВА САВ-1, ОБЛУЧЕННОГО НЕЙТРОНАМИ 39
Максимкин О.П., Яровчук А.В., Доронина Т.А., Турубарова Л.Г.

КОРРЕЛЯЦИЯ МЕХАНИЧЕСКИХ СВОЙСТВ НЕРЖАВЕЮЩЕЙ СТАЛИ ПОД ОБЛУЧЕНИЕМ 43
Ганеев Г.З., Туркебаев Т.Э., Карпиков А.Н.

ЗАВИСИМОСТЬ СКОРОСТИ ПОЛЗУЧЕСТИ БЕРИЛЛИЯ ОТ НАПРЯЖЕНИЯ И ТЕМПЕРАТУРЫ В УСЛОВМЯХ РЕАКТОРНОГО ОБЛУЧЕНИЯ 45
Карпиков А.Н., Туркебаев Т.Э., Ганеев Г.З.

THE SYSTEMATICS FOR DESCRIPTION OF FRAGMENT MASS YIELDS IN NEUTRON AND PROTON INDUCED FISSION OF ACTINIDES 49
D.M. Gorodisskiy, S.I. Mulgin, A.Ya. Rusanov, S.V. Zhdanov

ИЗГОТОВЛЕНИЕ МИШЕНЕЙ ЯДЕР ^{14}N, ^{16}O ПРИМЕНЯЕМЫХ В ЭКСПЕРИМЕНТАХ ПО ОПРЕДЕЛЕНИЮ СЕЧЕНИЙ РЕАКЦИЙ ^{14}N, ^{16}O (P, γ)^{15}O, ^{17}F ПРИ НИЗКИХ ЭНЕРГИЯХ НАЛЕТАЮЩИХ ПРОТОНОВ 71
Буртебаев Н., Бурминский В.П., Джазаиров–Кахраманов В., Зазулин Д.М., Лисицин В.Н., Тулеушев Ю.Ж.

ИЗУЧЕНИЕ РЕЗОНАНСОВ ДАЛЬНОДЕЙСТВИЯ В ЯДЕРНОЙ И АТОМНОЙ ФИЗИКЕ 75
Такибаев Н.Ж., Пеньков Ф.М., Ливенцова А.С., Ленник С.Г., Красовицкий П.М.

МНОГОЦЕЛЕВАЯ ГАММА-УСТАНОВКА ДЛЯ РАДИАЦИОННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ И ИССЛЕДОВАНИЙ ВОЗДЕЙСТВИЯ ОБЛУЧЕНИЯ НА СТРУКТУРУ И СВОЙСТВА МАТЕРИАЛОВ 81
Жотабаев Ж.Р.

КОМПЛЕКС ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ В ИЗУЧЕНИИ РАДИОЭКОЛОГИЧЕСКОЙ СИТУАЦИИ КАЗАХСТАНА 85
Кадыржанов К.К., Солодухин В.П., Казачевский И.В., Лукашенко С.Н., Хажекбер С., Чумиков Г.Н., Князев Б.Б., Пивоваров С.П., Якушев Г.М., Верещак М.Ф., Чакров П.В., Платов А.В.

РАЗРАБОТКА ТЕХНОЛОГИИ И ИЗГОТОВЛЕНИЕ ИСТОЧНИКОВ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ РАДИОИЗОТОПА Cd-109 91
Желтов Д.А., Зиновьева М.В., Князев А.М., Карташов Я.В., Лысухин С.Н., Смайлов Е.К.

ПЕРЕВОЗКА ВОСЬМИМЕСТНОГО ТРАНСПОРТНО-УПАКОВОЧНОГО КОМПЛЕКТА СОДЕРЖАЩЕГО ОТРАБОТАВШЕЕ ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО РУ БН-350 С ТОЧКИ ЗРЕНИЯ ЯДЕРНОЙ БЕЗОПАСНОСТИ 94
Тур Е.С., Айсабеков А.Ж.

ОЦЕНКА РАЗМЕРОВ САНИТАРНО-ЗАЩИТНОЙ ЗОНЫ ПЛОЩАДКИ ПЕРЕГРУЗКИ МЕТАЛЛОБЕТОННЫХ КОНТЕЙНЕРОВ С ОТРАБОТАВШИМ ЯДЕРНЫМ ТОПЛИВОМ РУ БН-350 98
Тур Е.С., Мукенева С.А.

ПОСЛЕРЕАКТОРНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ТВЭЛОВ, ИСПЫТАННЫХ НА ЧЕРЕДУЮЩИХСЯ РЕЖИМАХ РАБОТЫ РЕАКТОРА ЯЭДУ 102
Дерявко И.И., Перепелкин И.Г., Стороженко А.Н.

О ВОЗМОЖНОСТЯХ ТЕПЛОВЫХ МАШИН С ГАЗОВЫМ РАБОЧИМ ТЕЛОМ В ЗАМКНУТОМ ЦИКЛЕ..... 105
Котов В.М., Тихомиров Л.Н., Котов С.В., Райханов Н.А.

УДК 621.039.583

НЕОБХОДИМОСТЬ РАЗВИТИЯ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ В КАЗАХСТАНЕ И ВЫБОР МЕСТА СТРОИТЕЛЬСТВА АЭС

Такибаев Ж.С.

Национальный ядерный центр Республики Казахстан, Курчатов

Обсуждаются актуальные вопросы развития атомной энергетики в Казахстане, предложены и обоснованы типы реакторов для строительства АЭС и места их размещения.

Вопрос необходимости развития атомной энергетики я ставлю сейчас с таким же рвением, как лет 15 тому назад - вопрос отказа Казахстаном от статуса ядерной державы. Последний, как известно, был решен Указом Президента Казахстана о закрытии Семипалатинского испытательного полигона, где в течение 40 лет испытывались ядерные бомбы, их называли «изделиями», самых разных видов, начиная от так называемых грязных бомб, вплоть до термоядерных. Количество испытанных «изделий» составило порядка 600.

Чтобы не оказаться мишенью при ядерном бомбометании в случае возникновения ядерной войны, Казахстану целесообразнее было отказаться, причем добровольно, от статуса ядерной державы. Более подробное обоснование содержится в книге [1]. В самом деле, небольшим количеством ядерных «изделий» мы никогда не смогли бы решить военную проблему, а разрушения на бесконечных просторах Казахстана были бы неисчислимыми и катастрофа - неизбежной.

А вот развивать мирную атомную энергетику необходимо. Об этом я постарался написать в своей книге [2] и во многих статьях, например в [3]. Независимо от всяких обстоятельств, все равно, рано или поздно человечество вынуждено будет глобально использовать атомную энергию, как базовый (основной) источник энергии, ибо после истощения углеводородного энерго-топлива другого источника энергии, обеспечивающего на длительное время (тысячелетие) потребность мира в энергии, по существу нет. Например, такие ее виды как солнечная, энергия ветра, энергия биомассы, гидроэнергия и т.д. всегда будут использоваться и применяться во многих бытовых условиях, но они не могут быть базовыми, как, например в настоящее время углеводородные энергоресурсы. Конечно, здесь следует упомянуть водородную энергетику [4], на которую возлагают большие надежды многие ученые, и я в том числе, но для получения водорода необходима энергия. Можно использовать в качестве топлива и сам водород, однако это не простая задача, она еще не решена, но работу в этом направлении ведут многие ученые во всем мире.

Теперь вернемся к вопросу о необходимости развития мирной атомной энергетики в Казахстане. В первую очередь, конечно, следует строить современную атомную электростанцию (АЭС). В Казахстане была одна атомная энергетическая станция, где использовался атомный реактор на быстрых нейтронах БН-350. Он исчерпал свой ресурс, сейчас происходит его демонтаж. Теперь надо строить атомные электростанции и атомные тепловые станции, выбрав из существующих в мире наиболее подходящие для условий нашей страны марки АЭС. Мне кажется, что надо выбрать подходящий тип из довольно большого количества водо-водяных АЭС, точнее водо-водяных ядерных реакторов для АЭС.

Дело в том, что за период существования атомной энергетики наиболее оправдавшими себя оказались именно водо-водяные реакторы. Они безопасны и просты в эксплуатации. Следует указать, что за период их эксплуатации во всем мире, т.е. свыше 50 лет, не было ни одной серьезной аварии на реакторах типа ВВР на тепловых нейтронах. Что же касается АЭС с реактором типа CANDU (канадские АЭС), т.е. тяжеловодные реакторы, то они во-первых, дорогие и во-вторых, придется строить заводы для получения тяжелой воды, необходимые для этих реакторов.

Теперь о выборе места строительства АЭС. Вопрос является очень серьезным, так как необходимо считаться с мнением народа и соблюдать все меры безопасности.

В течение свыше 40 лет в пос.Алатау под Алматы работает исследовательский реактор ВВР-К, который обеспечивается подземной водой. Я, как руководитель пуска реактора, и мои сотрудники в те годы, ныне профессоры Батырбеков Г.А. и Околович В.Н. [5], очень много времени и нервов потеряли на доказательство того, что можно использовать подземные воды даже под Алматы для обслуживания реактора. Сейчас наша позиция доказана, реактор обеспечивается подземной водой и ситуация оказалась более стабильна для безопасности реактора, так как дебит воды поверхностных водоисточников (например, речек Большой и Малой Алматинок или Талгара) сильно зависит от сезона и погодных условий, и это не все. Подземная вода, добываемая в скважинах, расположенных рядом с пос.Алатау обеспечивает в настоящее время не только реактор ВВР-К и сам поселок, но также значительная часть ее идет по трубопроводу в сеть водообеспечения г.Алматы.

Мы на этом реакторе в течение многих лет проводили работу по преобразованию ядерной энергии в электрическую и добились выдающихся результатов, что было документально оценено ведущими специалистами в этой области.

Академик Александров А.П. не верил вначале, называя эксперименты затеей Такибаева, что реакторную систему можно обеспечивать подземной водой, что является важным звеном строительства в будущем подземных АЭС, являющихся абсолютно безопасными, если будут предусмотрены те меры, на которые мы указываем в своих расчетах [2,3].

Учитывая сказанное выше, наиболее удобным местом для строительства АЭС в Южном Казахстане является регион железнодорожной станции Чу. В работе [3] мы пишем, что «Выбор места строительства АЭС в указанной выше программе является ее важнейшим звеном. Удачный выбор территории для строительства АЭС обеспечит успех всей дальнейшей работы.

Мы, естественно, рассматривали много вариантов по выбору такого места на территории Казахстана с учетом всевозможных экономических, даже в какой-то мере и политических конъюктур. И решили предложить территорию, прилегающую к железнодорожной станции Чу, точнее, между Чу и небольшим водохранилищем на слиянии рек Аксу и Чу, причем водообеспечение АЭС ориентируется исключительно на подземные воды.

По данным гидрогеологов [6] подземные воды описываемой территории (Чу-Сарысуйский бассейн) имеют огромные естественные запасы – около 1970 миллиардов куб. м, их ежегодно возобновляемые ресурсы составляют 63 куб.м/с. Место очень удобно для создания цепи подземных АЭС с сопутствующими им курганами для захоранивания РАО.

Вторым местом для строительства АЭС или атомных тепловых станций (АТС) является регион бывшего Семипалатинского испытательного полигона (СИП). В контексте этого предложения, следует рассмотреть с точки зрения безопасности целесообразность строительства АЭС и АТС внутри упомянутого выше горного массива, изолированного и далеко отстоящего от населенных пунктов. Однако на первое время следует проектировать опытные АЭС и АТС малой и средней мощности, так как существует ряд проблем, например их водообеспечение и радиоэкология региона, а также взаимосвязь и взаимодействие с подземными водоресурсами и существующими месторождениями угля и т.д.

После ликвидации последствий ядерных взрывов СИП является наиболее удобным регионом для развития атомной энергетики».

Когда мы говорим о необходимости, особенно в будущем, когда иссякнут запасы углеводородного сырья, использования атомной энергии, мы имеем в виду глубокое и всестороннее освоение, в первую очередь, обычного ядерного сырья, т.е. запасов урана и тория в полной мере. Дело в том, что в настоящее время (начало 21 века) технические возможности в мире таковы, что в полной мере мы не используем даже уран-235, который составляет всего 0,7% природного урана. Что же касается урана-238, то он используется сейчас только в небольшом количестве в быстрых реакторах и в специальных ядерных бомбах. Следовательно, предстоит еще много работы по освоению с большей эффективностью использования обычного ядерного сырья, т.е. урана и тория. Чтобы это было понятно, приведу лишь один рядовой пример, а именно, в изготовленном специально для атомных реакторов обогащенном изотопом урана-235 топливе используются не все изотопы урана-235, по различным техническим причинам, среди которых, конечно, коррозия материалов оболочек тепловыделяющих элементов. По этой причине в отходах ядерного топлива остается неиспользованное топливо в виде изотопов урана-235 и других вновь образованных высокоактивных зауановых элементов. Специалисты предел использованного топлива в тепловыделяющих элементах, состоящих из ядерного топлива, называют глубиной выгорания топлива. Глубина выгорания ядерного топлива и определяет процент использования заложенного в реактор топлива.

Что же касается использования урана-238, являющегося основным в составе природного урана, и другого потенциального ядерного топлива, то решение этого вопроса связано с процессом развития быстрых реакторов. Вопрос ждет своего решения, надеемся, что он будет решен в течение текущего столетия.

Следующей проблемой в поисках источников энергии является проблема использования энергии синтеза, в частности энергии термоядерных реакций.

Большой вопрос - освоение действительно неисчерпаемых энергий управляемых термоядерных реакций, отодвигается еще дальше из-за нерешенных проблем. Проблем здесь еще много, главной из них являются вопросы устойчивости горячей плазмы, связанные с примесью тяжелых элементов, идущих от стенок плазменных термоядерных установок, и вообще отсутствия цепных реакций в малом количестве (объеме) плазмы. Одних тепловых реакций без цепных, по-видимому, недостаточно. Но, поживем - увидим! Все же ученые надеются, что освоение энергии синтеза в конце концов осуществится, может быть даже путем использования термоядерных взрывов [7], где цепные реакции, по-видимому, играют важную роль.

Литература

1. Н.А. Назарбаев. Эпицентр Мира. Астана: Елорда, 2001, 234 с.
2. Ж.С. Такибаев. Атомная энергия – разрушающая и созидающая. Алматы: НИЦ Ғылым, 2002, 220 с.
3. Ж.С. Такибаев. Поиск оптимальных и безопасных путей развития атомной энергетики. – Промышленность Казахстана. №2(5), 2001, с.90.
4. Ж.С. Такибаев. Физические основы солнечно-водородной энергетики. Алма-Ата: Рауан, 1992, 176 с.
5. Ж.С. Такибаев, Г.А.Батырбеков, В.Н.Околович, Л.А.Юровский. Казахстанский научно-исследовательский реактор ВВР-К. – Вестник АН КазССР. №9, 1968, с.3-12.
6. А.К. Джакелов. Формирование подземных вод Чу-Сарысуйского артезианского бассейна. Алматы: Ғылым, 1993, 240 с.
7. Г.А. Иванов, Н.П.Волошин, Б.В.Литвинов и др. Взрывная дейтериевая энергетика. Снежинск, 1997, 138 с.

АТОМДЫҚ ЭНЕРГЕТИКАНЫ ДАМЫТУДЫҢ ҚАЖЕТТІГІ ЖӘНЕ АЭС ҚҰРЫЛЫСЫНА ОРЫН ТАҚДАУ

Тәкібаев Ж.С.

Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы

Қазақстанда атомдық энергетиканы дамытудың көкейтесті мәселелері талқыланады, АЭС құрылысы үшін реактор түрлері және оларды жайғастыратын орындар ұсынылған әрі негіздеп берілген.

NECESSITY OF DEVELOPMENT OF ATOMIC ENERGETICS IN KAZAKSTAN AND CHOICE OF A SITE NUCLEAR ENERGY STATION

Zh.S. Takibayev

National Nuclear Center Republic of Kazakstan

The urgent questions of development of atomic energetics in Kazakhstan are discussed, are offered and the types reactors for construction NES and place of their accommodation are proved.

УДК 621.039.53.536

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ LHI И АНАЛИЗ ОХЛАЖДАЕМОСТИ КОРИУМА ВНУТРИ СИЛОВОГО КОРПУСА РЕАКТОРА

Васильев Ю.С., Жданов В.С., Колодешников А.А., Маруяма Ю., Като М., Нагасака Х.

[1)]Национальный ядерный центр Республики Казахстан, Курчатов
[2)]NUPEC, Япония

Выполнена серия экспериментов LHI для получения данных по механизму охлаждения кориума в днище силового корпуса реактора. Расплав, содержащий UO_2 в качестве имитатора кориума сливался в модель днища, заполненную водой. Температура стенки модели резко возрастала сразу после контакта с кориумом, а затем постепенно снижалась до начальной температуры. Модель охлаждаемости с зазором, построенная на основе роста зазора между кориумом и днищем и проникновением воды в этот зазор была включена в код LIDEC в совокупности с другими основными моделями. Определено на основании экспериментов и аварии на TMI-2, что код LIDEC способен воспроизвести теплообмен между кориумом и стенкой днища. Максимальная масса кориума, которая может быть охлаждена, по оценкам составила 30…40 тонн и для теплогидравлических условий аварии на TMI-2 и приблизительно 4 тонны для последствий остановки на станции Zion. По оцененной массе охлаждаемого кориума и вероятности впрыска воды сделан вывод, что внутренняя вода в силовом корпусе снизила эффективность охлаждаемости кориума внутри корпуса, особенно при низком давлении.

ВВЕДЕНИЕ

Кориум, состоящий из материалов компонентов активной зоны может переместиться в нижнюю часть силового корпуса реактора в процессе тяжелой аварии на легководном реакторе (ЛВР), как это произошло при аварии на Три-Майл-Айленд (TMI-2) [1,2]. Кориум создает значительную тепловую нагрузку на днище силового корпуса вследствие генерации остаточного тепловыделения, если его охлаждение недостаточно. Эта тепловая нагрузка может вызвать разрушение днища силового корпуса, что приведет к выходу расплава активной зоны в полость контайнмента. Угроза целостности силового корпуса, которая может привести к событиям за его пределами (ex-vessel события), является одной из проблем обеспечения безопасности ЛВР.

Авария на TMI-2 показала, что подача воды в полость силового корпуса на ранней стадии деградации активной зоны может снизить количество кориума, перемещенного в нижний пленум, что приводит к увеличению возможностей охлаждаемости кориума, если внутренняя вода действует как достаточный сток тепла. Охлаждаемость кориума внутри силового корпуса (in-vessel охлаждаемость) имеет очень важное значение, т.к. позволяет снять угрозу событий за пределами корпуса.

В рамках проекта OECD TMI-VIP (Совместный проект исследования корпуса организацией экономического сотрудничества и развития) было определено, что около 19 тонн кориума обрушилось на днище силового корпуса в процессе аварии [3]. Металлографическое исследование в TMI-VIP показало, что температура днища корпуса в отдельных местах поднималась до ~1400 К и снижалась со скоростью 10…100 К/с после примерно 30-минутной выдержки[3]. Была высказана гипотеза [4], согласно которой между кориумом и днищем образовался зазор, как путь для проникновения воды. Эта гипотеза была подтверждена количественно в ряде экспериментов, в которых расплав окиси алюминия сливался в полусферический сосуд, заполненный водой [5-7].

Охлаждаемость кориума внутри корпуса внутренней водой экспериментально исследовано в серии экспериментов LHI (lover head integrity (целостность днища силового корпуса)) в рамках совместного проекта корпорации NUPEC (Япония) и НЯЦ РК. Целью экспериментов LHI являлось достижение охлаждаемости кориума внутри корпуса при использовании расплава, содержащего UO_2. Наряду с экспериментами LHI разрабатывается аналитический код LIDEC (Lower Head Integrity and Debris Coolability – целостность корпуса и охлаждаемость кориума). В настоящей статье описаны результаты экспериментов LHI, верификация кода LIDEC и применение кода к анализу аварии в масштабе реактора.

ЭКСПЕРИМЕНТЫ LHI

Экспериментальная установка

Схема установки для выполнения экспериментов LHI показана на рисунке 1. Основными узлами установки являются электроплавильная печь (ЭПП), модель днища (LHM) и устройство приема расплава (УПР) для размещения LHM. Имитатор кориума, содержащий UO_2, ZrO_2, Zr и нержавеющую сталь загружался в ЭПП и плавился методом косвенного индукционного нагрева в графитовом тигле.

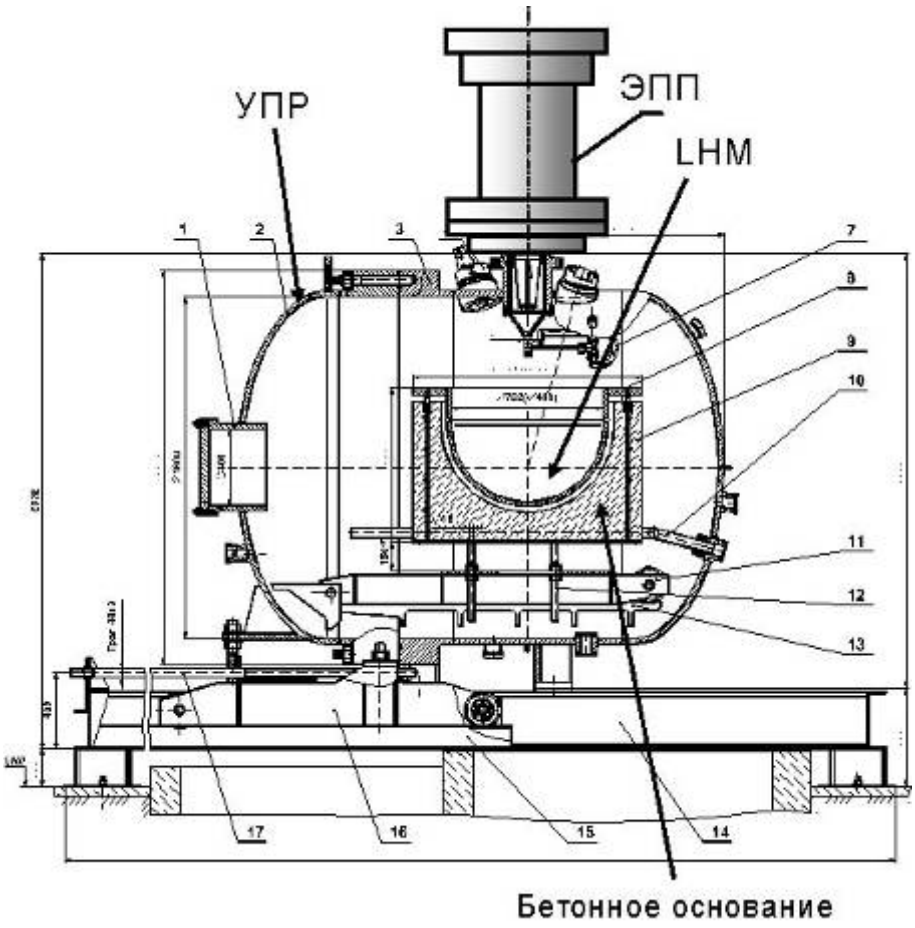


Рисунок 1. Схема установки для экспериментов LHI

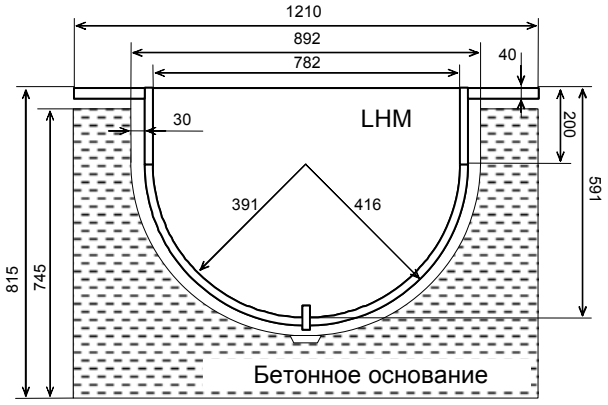


Рисунок 2. Схема и основные размеры большой LHM

Были использованы модели днища из нержавеющей стали двух типоразмеров: с внутренним радиусом 0,245 и 0,391 м. Конструкция и основные размеры LHM показаны на рисунке 2. LHM устанавливались на бетонном основании. Толщина стенки LHM обоих типоразмеров была одинаковой. Для измерения температуры и деформации стенки LHM были предусмотрены термопары и датчики перемещения. Кориум сливался в LHM, заполненную водой, с высоты ~1,5 м. УПР представляет собой горизонтально расположенную цилиндрическую емкость внутренним диаметром 1,8 м, длиной 2,5 м, с толщиной стенки 30 мм. Внутренняя поверхность УПР покрыта слоем теплоизоляции для минимизации утечек тепла. Вода в LHM начинала подаваться вскоре после слива расплава из ЭПП.

Условия испытаний

Основные параметры экспериментов LHI приведены в таблице 1. В экспериментах LHI-1 и LHI-6 использовались LHM большого диаметра, а в эксперименте LHI-4 – малого. Масса слитого кориума определялась после каждого эксперимента индивидуально. Начальная температура кориума измерялась в ЭПП пирометром. Состав кориума моделировал условия тяжелой аварии в реакторе с кипящей водой (BWR).

Таблица 1. Основные условия экспериментов LHI

	LHI-1	LHI-4	LHI-6
Состав кориума, загружаемого в ЭПП	UO_2 (0.63), ZrO_2 0.06) Zr (0.22), SUS[1)] (0.09)		
Масса слитого кориума, кг	50	43	50
Начальная температура расплава, К	2800	2600	NA[2)]
Внутренний радиус LHM, м	0.391	0.245	0.391
Глубина исходного водного бассейна в LHM, м		0.16	
Начальная температура воды в LHM, К	330	330	340
Начальное давление в УПР, МПа	0.18	0.18	0.2

1) Нержавеющая сталь; 2) Отказ пирометра

Результаты экспериментов

В таблице 2 показано распределение масс застывшего кориума в разных конфигурациях. Примерно половина сливаемого кориума разбивалась на частицы, и слой частиц располагался поверх агломератов и сплошного слитка. Высокая доля фрагментированного кориума могла быть вызвана большой высотой слива струи, приводящая к увеличению скорости входа кориума в воду.

Таблица 2. Распределение массы застывшего расплава

	LHI-1	LHI-4	LHI-6
Фрагменты, кг	22	19	13
Агломераты, кг	11	5	11
Слиток, кг	17	19	26

Термопары, вмонтированные в стенку LHM, показали резкое повышение температуры стенки сразу после соприкосновения кориума с LHM. На рисунке 3 показана измеренная температура стенки LHM в эксперименте LHI-6. Аналогичная тенденция изменения температуры получена в двух других экспериментах.

В экспериментах обнаружено, что внутренняя поверхность LHM локально оплавляется в районе дна емкости. После достижения максимальной температуры стенка LHM начинает постепенно охлаждаться до начальной температуры. Наблюдаемое изменение температуры стенки LHM было аналогично экспериментам с расплавом окиси алюминия в качестве имитатора кориума [5-7]. Наименьший подъем температуры и наибольшая скорость охлаждения LHM наблюдались в эксперименте LHI-4 с малой моделью днища.

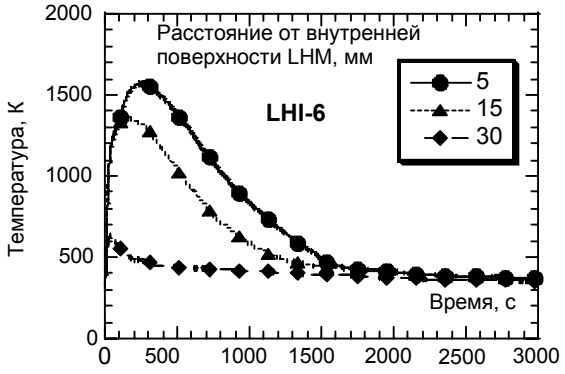


Рисунок 3. Температура стенки LHM в эксперименте LHI-6

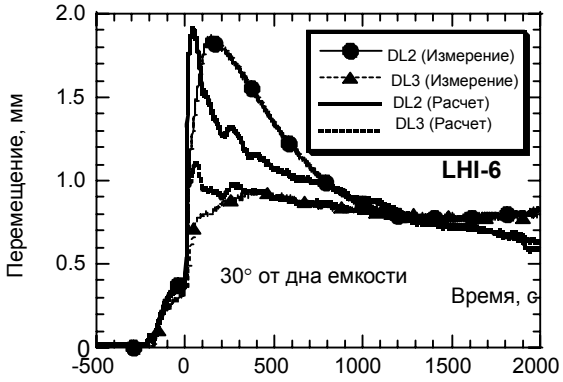


Рисунок 4. Измеренное и рассчитанное смещение стенки LHM в эксперименте LHI-6

На рисунке 4 показаны измеренное смещение стенки LHM в эксперименте LHI-6 и расчет с использованием температуры LHM вблизи размещения датчика перемещения и температурного коэффициента линейного расширения нержавеющей стали. Рост смещения в отрицательный момент времени (до слива расплава) вызван подачей горячей воды в LHM перед сливом расплава. В целом расчеты хорошо согласуются с тенденцией результатов измерений.

РАЗРАБОТКА КОДА LIDEC

Теоретические модели

Основные явления, моделируемые кодом LIDEC, показаны на рисунке 5. Кориум трактуется, как единый объем, а теплогидравлика кориума не рассчитывается кодом LIDEC. Передача тепла в корке и в стенке LHM численно рассчитывается методом конечных элементов.

В коде LIDEC использованы известные соотношения для естественной турбулентной конвекции. Для объемно нагреваемого бассейна добавлены следующие соотношения:

$$\log Nu_{up} = \frac{\log Ra_{i,\max} - \log Ra_i}{\log Ra_{i,\max} - \log Ra_{i,\min}} \log Nu_{up,(5)} +$$

$$+ \frac{\log Ra_i - \log Ra_{i,\min}}{\log Ra_{i,\max} - \log Ra_{i,\min}} \log Nu_{up,(6)}, \qquad (1)$$

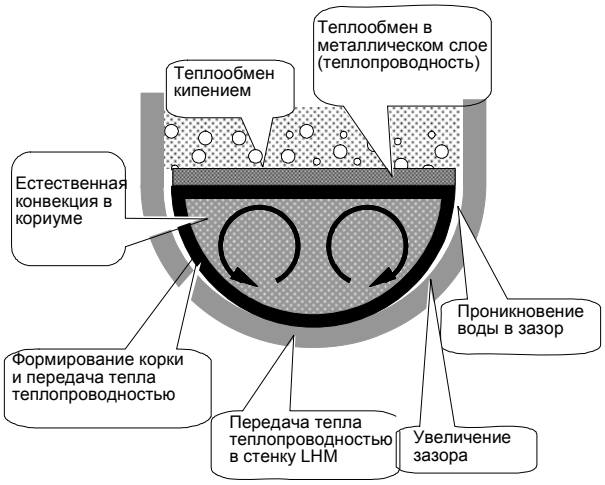


Рисунок 5. Основные явления, моделируемые кодом LIDEC

$$\log Nu_{dn} = \frac{\log Ra_{i,\max} - \log Ra_i}{\log Ra_{i,\max} - \log Ra_{i,\min}} \log Nu_{dn,(7)} + \\ + \frac{\log Ra_i - \log Ra_{i,\min}}{\log Ra_{i,\max} - \log Ra_{i,\min}} \log Nu_{dn,(8)}, \quad (2)$$

где Nu и Ra_i определяются как:

$$Nu = \frac{ql}{\lambda_d \Delta T}, \quad (3)$$

$$Ra_i = \frac{g\alpha_d Q_v l^5}{\kappa_d \nu_d \lambda_d}. \quad (4)$$

Индексы (5), (6), (7) и (8) в уравнениях (1) и (2) показывают величины, полученные из следующих соотношений [8-12]:

$$Nu_{up} = 0.345 Ra_i^{0.233} \ (10^8 < Ra_i < 10^{14}), \quad (5)$$

$$Nu_{up} = 0.383 Ra_i^{0.233} \ (10^{14} < Ra_i < 10^{17}), \quad (6)$$

$$Nu_{dn} = 0.54 Ra_i^{0.18} (l/R)^{0.26} \ (10^8 < Ra_i < 10^{14}), \quad (7)$$

$$Nu_{dn} = 0.131 Ra_i^{0.25} (l/R)^{0.19} \ (10^{14} < Ra_i < 10^{17}), \quad (8)$$

Для анализа экспериментов, относящихся к охлаждаемости кориума внутри корпуса без объемного тепловыделения, использованы соотношения для среднего теплового потока, полученные в экспериментах с нестационарным охлаждением фреоном и ли горячей водой [8,13,14]. Эти соотношения были выражены через Nu и Ra_i заменой Q_v на Q_{cd}:

$$Q_{cd} = \rho_d C_{pd} \frac{dT_d}{dt}. \quad (9)$$

В код LIDEC включены два соотношения, полученные в экспериментах ACOPO [13] и UCLA[15], для расчета теплового потока вверх от кориума. Локальные тепловые потоки от нижней поверхности кориума выведены как функции продольной координаты и Nu_{dn}, выраженного уравнениями (2), (7) или (8).

Модель охлаждаемости через зазор (МОЗ) в коде LIDEC аналогична используемой в коде CAMP[16], которая учитывает рост зазора вследствие термического расширения днища корпуса и проникновение воды в зазор на основе встречного ограничения потока на входе в зазор. В коде LIDEC выполнены следующие преобразования и упрощения МОЗ:

1. В МОЗ добавлено влияние тепловой усадки корки.
2. Соотношения для пленочного кипения на обеих поверхностях зазора заменены уравнениями Вестватера [17] для учета турбулентности паровой пленки.
3. Ширина зазора принята пространственно равномерной с величиной на входе зазора.

Ширина зазора рассчитывается в коде LIDEC с использованием увеличения радиуса LHM за счет термического расширения и уменьшения радиуса корки за счет тепловой усадки:

$$\Delta R_{lh} = \beta_{lh} R_{i,lh} \left(T_{ref,lh} - T_{av,lh} \right), \quad (10)$$

$$\Delta R_c = \frac{\Delta R_{uc} + f_c \Delta R_{lc}}{1 + f_c}, \quad (11)$$

$$\Delta R_{uc} = \beta_c R_{i,uc} \left(T_{ref,uc} - T_{av,uc} \right), \quad (12)$$

$$\Delta R_{lc} = \beta_c R_{i,lc} \left(T_{ref,lc} - T_{av,lc} \right) \cos\phi. \quad (13)$$

Начальная температура LHM и температура плавления и застывания активной зоны взяты из литературы как $T_{ref,lh}$, and $T_{ref,uc}$ и $T_{ref,lc}$ соответственно. Ширина зазора на входе рассчитана из ΔR_{lh} и ΔR_c по гипотетическому сдвигу кориума вниз до соприкосновения с LHM на дне (как в коде CAMP).

Верификация кода

Верификация кода LIDEC выполнялась с использованием результатов экспериментов LHI и аналогичных экспериментов с окисью алюминия. Сравнение результатов экспериментов LHI-4 и LHI-6 с расчетом температуры стенки LHM приведены на рисунках 6 и 7 соответственно. Оба графика показывают, что код LIDEC недооценивает скорость начального роста температуры. Разброс расчетных и измеренных данных наиболее заметен ближе к дну LHM. Предполагается, что недооценка скорости роста начальной температуры является следствием предположения, что зазор пространственно равномерный. В реальной конфигурации кориум и LHM соприкасаются вблизи дна LHM.

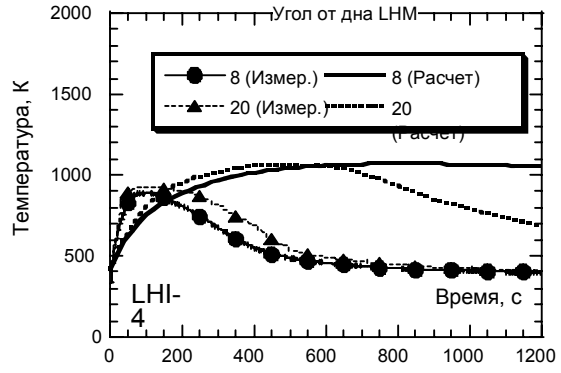


Рисунок 6. Температура стенки LHM для эксперимента LHI-4

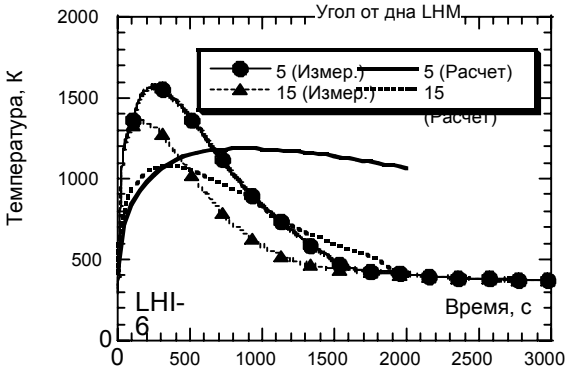


Рисунок 7. Температура стенки LHM для эксперимента LHI-6

Кодом LIDEC анализировались эксперименты по охлаждаемости кориума внутри силового корпуса, выполненные в JAERI (эксперимент IDC002 [5]) и в KAERI (эксперимент LAVA-4 [7]). В обоих экспериментах расплав окиси алюминия, полученный термитной реакцией, сливался в полусферический сосуд, заполненный водой. Прогнозируемая температура стенки сосуда показана на рисунках 8 и 9 для экспериментов IDC002 и LAVA-4 соответственно. Расчет качественно воспроизводит температурные кривые стенки сосуда для обоих экспериментов, поскольку, как было предсказано, проникновение воды в зазор к дну сосуда произошло в интервале времени, обозначенном на обоих рисунках. Особенно хорошо это совпало для эксперимента IDC002, хотя максимальная температура была переоценена кодом LIDEC.

Расчетная зависимость ширины зазора от времени для экспериментов LHI-4, LHI-6, IDC002 и LAVA-4 приведена на рисунке 10. Нетрудно заметить, что расчетная ширина зазора для экспериментов LHI-4 и LHI-6 заметно меньше, чем для IDC002 и LAVA-4. Это объясняется тем, что объем сплошного слитка кориума слишком мал по сравнению с объемом LHM в экспериментах LHI, чтобы сформировать достаточно обширный зазор, учитывая гипотетический контакт между кориумом и дном LHM, как отмечено ранее. В результате не учтено полное проникновение воды к дну LHM при анализе экспериментов LHI-4 и LHI-6.

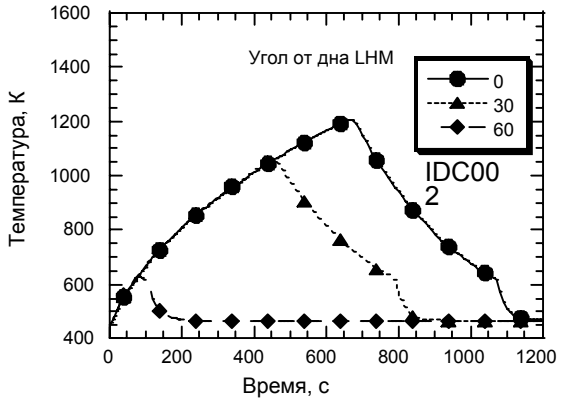


Рисунок 8. Расчетная температура стенки для эксперимента IDC002

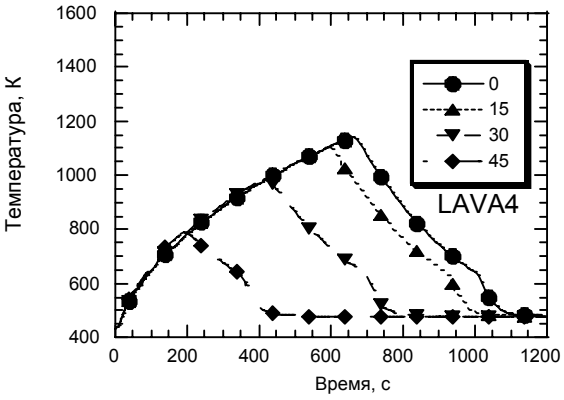


Рисунок 9. Расчетная температура стенки сосуда для эксперимента LAVA-4

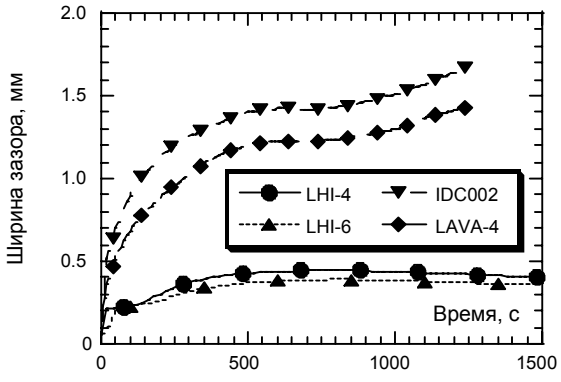


Рисунок 10. Расчетная ширина зазора в зависимости от времени

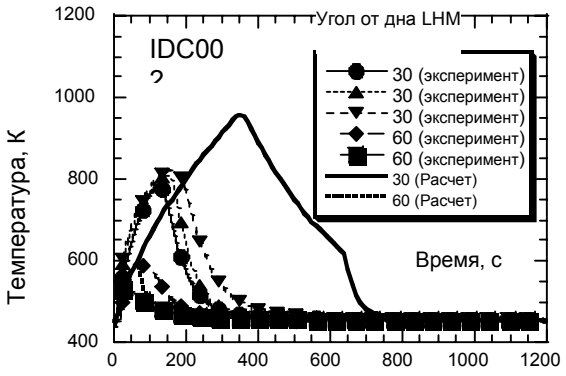


Рисунок 11. Сравнение температуры стенки емкости в эксперименте IDC002 с результатами расчета

В представленном анализе температура стенки сосуда усреднялась по всей полусферической части для оценки приращения радиуса сосуда. Для эксперимента IDC002 выполнен детальный расчет локальной деформации сосуда. При этом температура стенки сосуда усреднялась по внутренней поверхности, т.к. в результате эксперимента LHI-6 показано, что локальное перемещение стенки хорошо воспроизводит расчет на основе локальных измерений температуры (Рис. 4). Результат анализа сравнивается с данными эксперимента IDC002 на рисунке 11 для температурных кривых стенки сосуда. Хотя анализ показал переоценку параметра, согласование с экспериментом было улучшено, т.к. было предсказано образование зазора большей ширины.

АНАЛИЗ ДЛЯ МАСШТАБА РЕАКТОРА

Методика анализа

Концептуальная диаграмма для методики анализа в масштабе существующих реакторов представлена на рисунке 12. Чтобы оценить возможность охлаждения кориума внутренней водой силового корпуса для различных сценариев тяжелой аварии предполагается, что необходима количественная оценка событий, перечисленных ниже.

1. Интервал времени, в который становится возможной подача воды в силовой корпус после начала аварии (линия А).
2. Соотношение между временем начала подачи воды и количеством кориума, перемещенного в нижнюю часть корпуса (линия Б).
3. Доля кориума, фрагментированного при падении в водный бассейн внутри корпуса, которая формирует охлаждаемый слой и уменьшает количество сплошного кориума (разница между линиями Б и В).
4. Максимальное количество сплошного кориума, которое может быть охлаждено внутренней водой в силовом корпусе (точка Г).

При условии количественного определения вышеперечисленных явлений на основании концепции, показанной на рисунке 12. может быть оценена вероятность ΔP_{imc} охлаждения кориума внутренней водой в силовом корпусе.

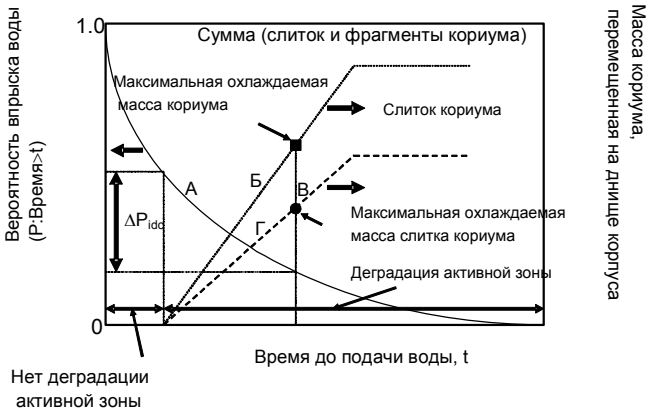


Рисунок 12. Концептуальная схема разработки методики оценки охлаждаемости кориума внутри корпуса внутренней водой

Анализ для масштаба реактора был выполнен с помощью кода LIDEC для аварий на TMI-2 и Zion (PWR). Этот анализ являлся частью работ по верификации кода LIDEC.

Условия для анализа

Основные условия для анализа, перечисленные в таблице 3, основаны на расчете аварии на TMI-2 [1,2,18]. Хотя полная масса кориума перемещенного в нижнюю часть силового корпуса составляла ориентировочно 19 тонн, при анализе предполагалось, что примерно половина кориума была разрушена на фрагменты [19].

Таблица 3. Основные условия для анализа аварии на TMI-2

Внутренний радиус днища корпуса	2.171 м
Толщина стенки днища	0.137 м
Начальная температура днища	584 K
Материал днища	Углеродистая сталь
Состав кориума	UO_2 (0.78) ZrO_2 (0.17) Нержавеющая сталь (0.05)
Масса кориума	10 тонн
Остаточное тепловыделение	0.1 кВт/кг
Начальная температура кориума	3000 K
Начальная температура воды	584 K
Давление в силовом корпусе	10 МПа

Условия для анализа аварии на Zion приведены в таблице 4. Большая часть этих условий получена на основе анализа развития тяжелой аварии с применением кода MAAP [20]. В обоих расчетах предполагалось, что внешняя поверхность днища силового корпуса была теплоизолирована.

Основным различием между экспериментами и реальной ситуацией в масштабе реактора является время перемещения кориума в нижний пленум. В экспериментах имитатор кориума почти мгновенно перемещается из плавильного узла в полусферический сосуд, заполненный водой. С другой стороны было подтверждено, что перемещение кориума при аварии на TMI-2 заняло около 2 минут [18,21]. Предполагается, что в период перемещения кориума образование широкого зазора затруднено, поскольку перемещающийся кориум блокирует верхний слой скопившегося кориума и ломает начальную тонкую корку. Следовательно, температуры днища и корки в момент времени, соответствующий завершению перемещения кориума взяты из литературы как $T_{ref,lh}$, $T_{ref,uc}$ и $T_{ref,lc}$ в уравнении (10), (12) и (13) при анализе в масштабе реактора.

Таблица 4. Основные условия для анализа Zion

Внутренний радиус днища корпуса	2.24 м
Толщина стенки днища	0.15 м
Начальная температура днища	417 K
Материал днища	Углеродистая сталь
Состав кориума	UO_2 (0.78) ZrO_2 (0.17) Нержавеющая сталь (0.05)
Остаточное тепловыделение	0.1 кВт/кг
Начальная температура кориума	3000 K
Начальная температура воды	417 K
Давление в силовом корпусе	0.4 МПа

Результаты анализа

Анализ аварии TMI-2

Расчетный график температуры внутренней поверхности днища корпуса показан на рисунке 13. Температура возрастает до ~1650 К на дне. Результаты качественно коррелируют с последствиями аварии на TMI-2, и днище силового корпуса не проплавляется.

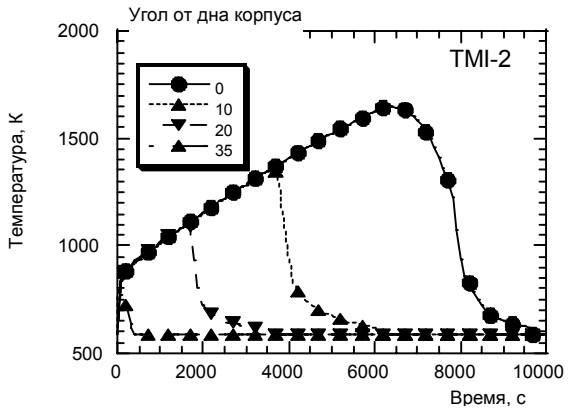


Рисунок 13. Расчетная температура внутренней поверхности днища в анализе аварии на TMI-2

Ширина зазора и нормированный фронт проникающей воды показаны на рисунках 14 и 15 соответственно. Нормированный фронт определен как:

$$N_{lp} = \frac{l_g - l_p}{l_g}. \qquad (14)$$

Максимальная расчетная ширина зазора составила ~3 мм. Уменьшение ширины зазора спустя 2000 секунд было вызвано снижением температуры днища корпуса.

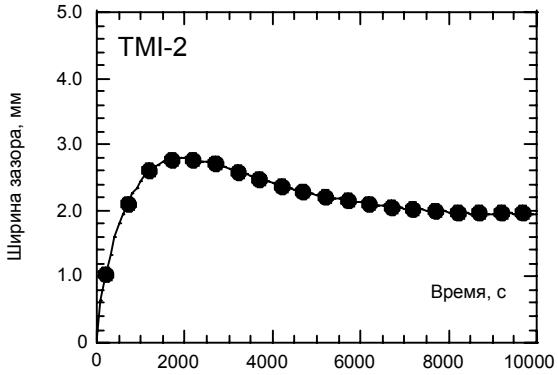


Рисунок 14. Изменение ширины зазора, вводимое при анализе аварии на TMI-2

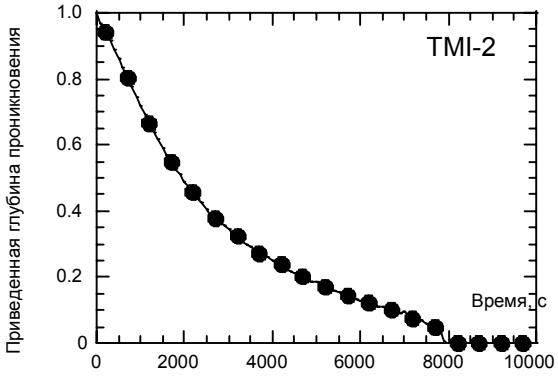


Рисунок 15. Глубина проникновения воды в зазор, рассчитанная при анализе аварии на TMI-2

Сравнение температуры днища при аварии на TMI-2 с результатом расчета приведено в таблице 5.

Таблица 5. Сравнение температуры днища при аварии на TMI-2 с результатом расчета

	TMI-2	Расчет
Максимальная температура (K)	1400	1650
Длительность "полки" максимальной температуры, минут	30	50[1)]
Скорость снижения температуры, К/мин.	10 – 100	30

1) Температура выше 1400 К

Найдена оценка максимальной температуры и длительности ее выдержки, которая ожидается из сравнения между кодом LIDEC и экспериментами. Полагаем, что разница лежит в приемлемом диапазоне.

Выполнен ряд расчетов для количественной оценки максимальной охлаждаемой массы слоя сплошного (не фрагментированного) кориума. Скорость перемещения расплавленной активной зоны в нижний пленум была одинаковой во всех расчетах. Расчеты показывают, что максимальная охлаждаемая масса составляет от 30 до 40 тонн в условиях аварии на TMI-2. Следует отметить, что деформация в результате ползучести днища корпуса не учитывалась в представляемых расчетах. Пластическая деформация может привести к увеличению ширины зазора, что приведет к увеличению максимальной охлаждаемой массы кориума.

Анализ аварии на станции Zion

Блокировка станции начиналась вначале при высоком давлении в силовом корпусе, близким к рабочему давлению, не из-за потери теплоносителя в первом контуре. Но разрыв трубопровода может вызвать потерю давления в силовом корпусе, когда термические и механические напряжения в трубопроводах превышают предел прочности материала. Согласно анализу остановки станции Zion с применением кода MAAP, разрыв трубопроводов произошел через ~3,36 часа после начала аварии, в результате чего давление в силовом корпусе снизилось до ~0,4 МПа.

Оценена вероятность охлаждения кориума внутренней водой силового корпуса на основе концепции, приведенной на рисунке 12. При анализе сделаны три допущения.

1. Масса кориума, перемещенная в нижний пленум пропорциональна времени орошения водой между моментом начала разогрева активной зоны (2,7 часа) и временем перемещения всей активной зоны (6,7 часа), полученного в результате анализа в коде MAAP.
2. Половина кориума, перемещенного в нижний пленум фрагментировалось, образовав охлаждаемый слой поверх сплошного слоя кориума.
3. Скорость перемещения была такой же, как при аварии на TMI-2 (10 тонн за 2 минуты).

Вероятность времени восстановления от потери мощности, после которой становится возможным впрыск воды в силовой корпус, была оценена по вероятностной модели Вейбула [22].

Расчетная температура внутренней поверхности днища силового корпуса для массы сплошного кориума 3 тонны и 5 тонн показана на рисунках 16 и 17. В случае массы 5 тонн температура внутренней поверхности днища достигает точки плавления стали на дне. Как видно из графика на рисунке 18, ширина зазора в этом случае почти такая же, как при анализе аварии на TMI-2. Но в отличие от расчета аварии на TMI-2, максимальная охлаждаемая масса кориума довольно мала в случае анализа аварии на станции Zion, что вызвано, в основном, увеличением удельного объема пара (увеличением скорости пара в зазоре) при снижении внутреннего давления.

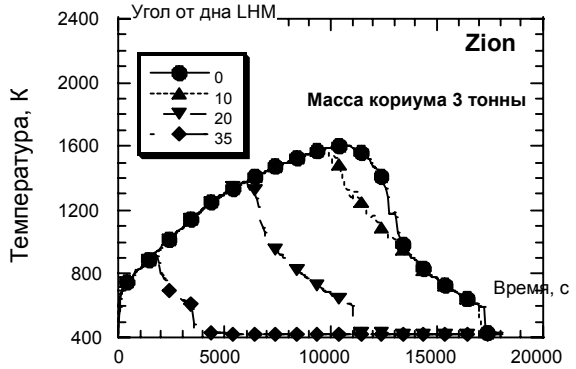


Рисунок 16. Расчетная температура внутренней поверхности днища для анализа Zion при массе кориума 3 тонны

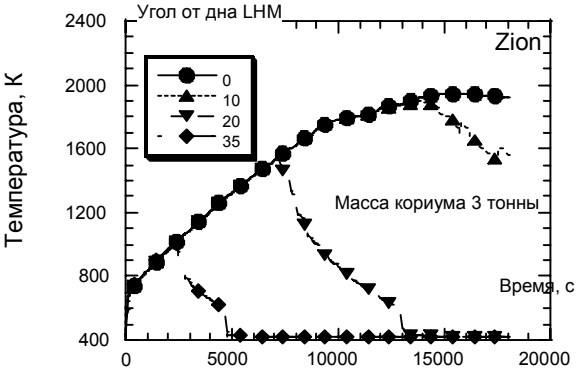


Рисунок 17. Расчетная температура внутренней поверхности днища для анализа Zion при массе кориума 5 тонн

При максимальной охлаждаемой массе кориума 4 тонны и вышеперечисленными допущениями вероятность охлаждения кориума внутренней водой в силовом корпусе оценена менее 0,1 для существующей последовательности событий блокировки станции Zion. Этот результат, а также выводы из анализа аварии на TMI-2 означает, что впрыск воды в силовой корпус имеет ограниченную эффективность как мера охлаждения кориума внутри корпуса при низком давлении. Кроме того, требуется ранний впрыск воды, даже для условий высокого давления.

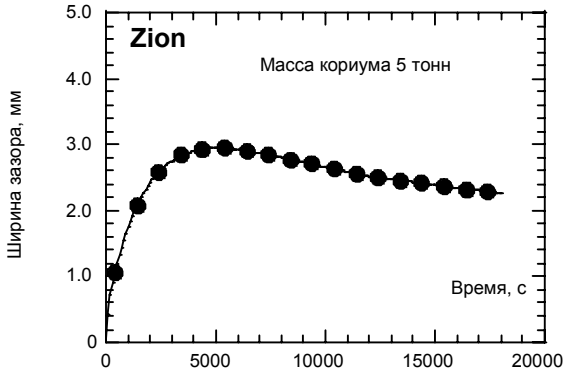


Рисунок 18. Зависимость ширины зазора от времени для анализа Zion с массой кориума 5 тонн

Выводы

Выполнена серия экспериментов LHI для получения данных по механизму охлаждения кориума в нижнем пленуме. Расплав имитатора кориума, содержащий UO_2, ZrO_2, Zr и нержавеющую сталь формировался в ЭПП и сливался в модель днища корпуса, заполненную водой. Температура стенки модели резко возрастала после соприкосновения с кориумом, а затем постепенно снижалась до начальной температуры. Это изменение температуры стенки LHM качественно совпадало с результатами ранее выполненных экспериментов с использованием в качестве имитатора кориума окиси алюминия.

Наряду с экспериментами LHI разрабатывается код LIDEC для анализа охлаждаемости кориума внутри корпуса. В код LIDEC, включена модель охлаждаемости через зазор (наряду с другими ключевыми моделями), оперирующая ростом зазора между кориумом и днищем корпуса и проникновением воды в этот зазор. В модели роста зазора приняты во внимание тепловое расширение днища и усадка кориума, покрытого коркой. В модели проникновения воды предполагалось, что поток воды в зазор вниз преобладает над генерацией пара с обеих поверхностей зазора, и поток тормозится на входе в зазор встречным потоком пара. Верификация кода LIDEC выполнялась на основе результатов экспериментов LHI и аналогичных экспериментов о окисью алюминия. Подтверждено, что код LIDEC способен воспроизвести термические процессы в стенке корпуса. Но из-за феноменологических неопределенностей код LIDEC систематически переоценивает тепловую нагрузку на стенку силового корпуса.

С применение кода LIDEC проанализированы аварии на The TMI-2 и Zion. Тепловая нагрузка на стенку корпуса в TMI-2 слегка переоценена. Максимальная расчетная масса охлаждаемого сплошного кориума составила 30…40 тонн для TMI-2 и 4 тонны для станции Zion. Большое различие максимальной охлаждаемой массы кориума является следствием разницы давлений в силовых корпусах. С учетом максимальной массы кориума и вероятного времени начала впрыска воды в корпус высказано предположение, что внутренняя вода обладает ограниченной эффективностью для внутрикорпусного захолаживания, особенно в условиях низкого давления.

Работа выполнена в рамках совместного проекта NUPEC – НЯЦ при поддержке министерства экономики, торговли и промышленности Японии.

Обозначения: C_p – удельная теплоемкость, f_c –весовой коэффициент, g – ускорение силы тяжести, l – глубина, l_g – глубина зазора, l_p – глубина проникновения, N_{lp} – приведенная глубина проникновения, Nu – число Нуссельта, q – тепловой поток, Q_{cd} – тепловыделениее при нестационарном остывании, Q_v – скорость объемного тепловыделения, R – радиус, ΔR – приращение радиуса, Ra_{cd} – число Релея для нестационарного остывания, Ra_i – внутреннее число Релея, t – время, T – температура, ΔT – приращение температуры, α – коэффициент объемного расширения, β – коэффициент линейного расширения, ϕ – наклон зазора на входе, κ – температуропроводность, λ – теплопроводность, ν – кинематическая вязкость, ρ – плотность

Индексы: *av* – среднее, *c* – корка, *i* – начальное, *d* – кориум, *lc* – нижняя корка, *lh* – днище корпуса, *max* – максимум, *min* – минимум, *uc* – верхняя корка

Литература

1. J. R. Wolf, J. L. Rempe, L. A. Stickler, D. W. Akers and G. E. Korth, L. A. Neimark and D. R. Diercks, “TMI-2 Vessel Investigation Project Integration Report”, NUREG/CR-6197 TMI V(93)EG10 EGG-2734, 1994.
2. M. Rubin and E. Beckjord, “Three Mile Island-New Findings 15 Years after the Accident”, Nucl. Safety, Vol. 35, No. 2, pp. 256-268, 1994.
3. D. R. Diercks and G. E. Korth, “Results of Metallographic Examinations and Mechanical Tests of Pressure Vessel Samples from the TMI-2 Lower Head”, Nucl. Safety, Vol. 35, No. 2, pp. 301-312, 1994.
4. R. E. Henry and D. A. Dube, “Water in the RPV: A Mechanism for Cooling Molten Core in the RPV Lower Head”, Proc. Specialist Meeting on Selected Containment Severe Accident Management Strategies, pp. 93-104, Stockholm, Sweden, June 13-15 1994.
5. Y. Maruyama, N. Yamano, K. Moriyama, H. S. Park, T. Kudo, Y. Yang and J. Sugimoto, "Experimental Study on In-Vessel Debris Coolability in ALPHA Program", Nucl. Eng. Des., Vol. 187, pp. 241-254, 1999.
6. S. Imai, K. Sato, R. Hamazaki and R. E. Henry, “Experimental Study on In-Vessel Cooling Mechanisms”, Proc. the Seventh International Conference on Nuclear Engineering, Tokyo, Japan, April 19-23, 1999.

7. J. H. Kim, K. H. Kang, R. J. Park, S. B. Kim and H. D. Kim, “Experimental Study on Inherent Cooling Mechanism during a Severe Accident”, Proc. the Seventh International Conference on Nuclear Engineering, Tokyo, Japan, April 19-23, 1999.
8. T. G. Theofanous and S. Angelini, “Natural Convection for In-Vessel Retention at Prototypic Rayleigh Numbers”, Nucl. Eng. Des. Vol. 200, pp. 1-9, 2000
9. J. M. Bonnet and J. M. Seiler, “Thermal Hydraulic Phenomena in Corium Pools: The BALI Experiment”, Proc. the Seventh International Conference on Nuclear Engineering, Tokyo, Japan, April 19-23, 1999.
10. M. Helle, O. Kymalainen and H. Tuomisto, “Experimental Data on Heat Flux Distributio from a Volumetrically Heated Pool with Frozen Boundaries”, Proc. OECD/CSNI Workshop on In-Vessel Core Molten core Retention and Coolability, Garching, Germany, March 3-6 1998, NEA/CSNI/R(98)18, pp. 173-183, 1999.
11. U. Steinberner and H. H. Reineke, “Turbulent Buayancy Convection Heat Transfer with Internal Heat Sources”, Proc. the Sixth International Heat Transfer Conference, Toronto, Canada, Vol. 2, pp. 305-310, 1978.
12. F. Mayinger, M. Jahn, H. H. Reineke, V. Steinberner, “Examination of Thermalhydraulic Processes and Heat Transfer in a Core Melt”, BMFT RS 48/1, Institut fur Verfahrenstechnik der T. U. Hanover FRG, 1976.
13. T. G. Theofanous, C. Liu, S. Additon, A. Angelini, O. Kymalainen and Salmassi, “In-Vessel Coolability and Retention of a Core Melt”, Nucl. Eng. Des., Vol. 169, Nos. 1-3, pp. 1-48, 1997.
14. T. G. Theofanous, M. Maguire, S. Angelini and T. Salmassi, “The First Results from the ACOPO Experiment”, Nucl. Eng. Des., Vol. 169, Nos. 1-3, pp. 49-58, 1997.
15. F. J. Asfia and V. K. Dhir, "An Experimental Study of Natural Convection in a Volumetrically Heated Spherical Pool Bounded on Top with a Rigid Wall", Nucl. Eng. Des., Vol. 163, pp. 333-348, 1996.
16. Y. Maruyama, K. Moriyama, H. Nakamura, K. Hashimoto, M. Hirano and K. Nakajima, "Validation of CAMP Code for Thermo-Fluiddynamics of Molten Debris in Lower Plenum", Proc. RASPLAV Seminar 2000, Munich, Germany, November 14-15, 2000.
17. Y. Y. Hsu and J. W. Westwater, “Approximate Theory for Film Boiling on Vertical Surfaces”, Chemical Eng. Progress Symp. Series, Vol. 56, No. 30 pp. 15-24, 1958.
18. J. N. Broughton, P. Kuan, D. A. Petti and E. L. Tolman, “A Scenario of the Three Mile Island Unit 2 Accident”, Nucl. Technol., Vol. 87, No. 1, pp. 34-53, 1989.
19. J. L. Rempe, et al., “Investigation of the Coolability of a Continuous Mass of Relocated Molten Core to a Water-Filled Lower Plenum”, EGG-RAAM-11445, 1994.
20. Electric Power Research Institute, “MAAP4 : Code Structure and Theory”, 1994.
21. J. R. Wolf, D. W. Akers and L. A. Neimark, “Relocation of Molten Material to the TMI-2 Lower Head”, Nucl. Safety, Vol. 35, No. 2, pp. 269-279, 1994.
22. R. L. Iman and S. C. Hora, “Modeling Time to Recovery and Initiating Event Frequency for Loss of Off-Site Power Incidents at Nuclear Power Plants”, NUREG/CR-5032, SAND87-2428, 1988.
23. Yu Maruyama, M. Kato, H. Nagasaka A. A. Kolodeshnikov, V. S. Zhdanov, Yu. S. Vassiliev, " Results Of LHI Tests And Associated Analyses On In-Vessel Debris Coolability, NTHAS3 : Third Korea-Japan Symposium on Nuclear Thermal Hydraulics and Safety, Kyeongju, Korea, October 13-16, 2002

LHI ТӘЖІРИБЕЛЕРІНІҢ НӘТИЖЕЛЕРІ ЖӘНЕ КОРИУМНЫҢ РЕАКТОРДЫҢ ҚУАТТЫ КОРПУСЫ ІШІНДЕ СУУЫН ТАЛДАУ

[1)]Васильев Ю.С., [1)]Жданов В.С., [1)]Колодешников А.А., [2)]Маруяма Ю., [2)]Като М., [2)]Нагасака Х.

[1)]Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы
[2)]NUPEC, Жапония

Кориумның реактордың қуаттылық корпусының түбінде сууы механизмі бойынша деректер алынуы үшін LHI тәжірибелер сериясы орындалды.Кориум еліктеткіші ретінде UO_2 бар балқыма су толтырылған түп моделіне құйылды. Модель қабырғасының температурасы, кориуммен әсерлесуден кейін, бірден үдеді, содан кейін барып, бастапқы температураға дейін төмендеді. Саңылаудың кориум мен түп арасында өсуі және судың өтуінің өсуі негізінде құрылған саңылаулы суу моделі, осы саңылауға LIDEC коды басқа негізгі модельдермен жиынтықтала енгізілді. Тәжірибелер және TMI-2 апат негізінде LIDEC кодының кориум мен түп қабырғасы арасында жылуалмасу туғызуға қабілеттілігі анықталды. Кориумның суытыла алатын ең жоғарғы салмағы, бағалау бойынша 30…40 тонна және TMI-2 апатының жылугидравликалық жағдайлары үшін шамамен, Zion стансасы аялдамасындағы салдар үшін, 4 тоннаны құрады. Суытылған кориумның бағаланған салмағы және су шашырау мүмкіндігі бойынша, қуаттылық корпусындағы ішкі су, әсіресе қысымның төмендігі кезінде, кориумның корпус ішіндегі сууәсерлілігін төмендетті деген тұжырым жасалды.

RESULTS OF LHI TESTS AND ASSOCIATED ANALYSES ON IN-VESSEL DEBRIS COOLABILITY

[1)]V.S. Zhdanov, [1)]Y.S. Vassiliev, [1)]A. Kolodeshnikov, [2)]Yu Maruyama, [2)]Masami Kato, [2)]Hideo Nagasaka

National Nuclear Center Republic of Kazakstan
NUPEC, Japan

A series of tests designated as LHI was performed in order to acquire findings on debris cooling mechanisms in the lower plenum. A molten UO2 mixture as a debris simulant was gravitationally slumped into a water-filled lower head model. Wall temperatures increased sharply after the contact with the debris followed by cooling to the initial temperature. A gap cooling model, which deals with gap growth at the interface between the debris and the lower head and water penetration into the gap, was incorporated into LIDEC code in conjunction with other key models. It was confirmed through experimental and TMI-2 accident analyses that LIDEC code was capable of reproducing the thermal transient of the lower head wall. The maximum coolable debris mass was evaluated to be 30 through 40 tons and approximately 4 tons for thermal-hydraulic conditions of the TMI-2 accident and Zion station blackout sequence, respectively. With the evaluated maximum coolable debris mass and the water injection probability, the RPV internal water is supposed to have limited effectiveness for the in-vessel debris cooling especially in low pressure sequences.

УДК 621.039.51

КОНЦЕПЦИЯ ЯДЕРНОГО РЕАКТОРА НА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНАХ С ПОЛНЫМ ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ УРАНОВОГО И ТОРИЕВОГО СЫРЬЯ

[1)]Котов В.М., [1)]Тихомиров Л.Н., [1)]Жумадилова Ж.А., [2)]Котов С.В.

[1)]Национальный ядерный центр Республики Казахстан, Курчатов
[2)]Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В работе показана возможность достижения полного использования уранового и ториевого сырья в реакторе на тепловых нейтронах за счет устранения захвата нейтронов в ксеноне 135 и "ускорения" поступления в активную зону урана 233. Описаны особенности работы реактора, обеспечивающие достижение положительных эффектов, приведены примеры для различных топливных композиций и дополнительные преимущества предлагаемой технологии.

ВВЕДЕНИЕ

Одной из важнейших задач современной атомной энергетики является повышение эффективности использования сырьевых ресурсов [1].

В данной статье к топливному сырью отнесены нуклиды ^{235}U, ^{238}U и ^{232}Th, которые составляют, соответственно, ~ 0.18, ~ 25, ~ 75 % их общих запасов в доступной части земной коры [2]. Работа реактора становится возможной при доле делящихся веществ в общей топливной массе в несколько раз большей 0.18 %. Отсюда ясна важность процесса преобразования неделящихся нуклидов ^{238}U и ^{232}Th в делящиеся и сложность достижения полноты использования топливного сырья.

СТЕПЕНЬ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ТОПЛИВНОГО СЫРЬЯ В ЯДЕРНОМ РЕАКТОРЕ

Степень использования топливного сырья в ходе кампании ядерного реактора определяется не только уровнем преобразования исходных неделящихся нуклидов в делящиеся, но и возможным выгоранием. В реальной кампании на величину выгорания накладываются ограничения, связанные с изменением запаса реактивности и стойкостью конструкции твэлов. Если величина выгорания всех заложенных нуклидов топливного сырья находится на уровне 20 %, то понятно, что полное использование сырья может быть реализовано только в рециклинге.

Важнейшим условием выполнения рециклинга является поддержание на заданном для данного реактора уровне количества делящихся веществ. Поэтому, степень использования исходного топлива P после нескольких циклов регенерации топлива зависит от изменения количества делящихся веществ и выгорания в ходе кампании. Если считать, что все виды делящихся веществ равноценны и сохраняются для новой кампании реактора, то формула для определения степени использования сырья примет вид:

$$P = Y \times (1 + \psi + \psi^2 + \ldots + \psi^{n-1}) \qquad (1)$$

где n – количество циклов регенерации топлива, или, что одно и тоже – количество кампаний реактора с данными характеристиками; ψ – отношение количества делящихся веществ в конце кампании к их исходному количеству; Y – выгорание топлива в ходе кампании реактора.

Заметим, что для достижения полного использования сырья достаточно, чтобы в ходе кампании выполнялось условие:

$$Y > 1 - \psi; \qquad (2)$$

Однако, реактор не может быть работоспособным, если в новом цикле работы реактора количество делящихся веществ будет уменьшено. Поэтому, для выполнения стабильной работы в рециклинге требуется удовлетворения следующего условия:

$$\psi_н > 1 - C_5 \qquad (3)$$

где $\psi_н$ – отношение количества новообразованных делящихся веществ (^{233}U, ^{239}Pu и другие) в конце кампании к их исходному количеству; C_5 – количество ^{235}U в начале кампании.

Заметим, что входящее в приведенные формулы выгорание должно учитывать те сырьевые компоненты, которые остаются вне реактора при подготовке топлива. Так, если в реактор загружено топливо из смеси ^{235}U и ^{238}U с обогащением по ^{235}U равным 4 % и достигается выгорание этого топлива 5 %, то с учетом оставшегося в отвалах ^{238}U реальное выгорание используемого сырья равно ~ 0.78 % при содержании ^{235}U в отвале 0.1 %.

Если в этом же реакторе ψ = 0.7, то использование уранового топливного сырья в рециклинге с n > 18 будет равно 2.6 %. Эти данные характерны для современных реакторов на тепловых нейтронах как идеализированные. В реальности дело обстоит еще хуже за счет того, что после каждой кампании приходится выводить из процесса "остатки" ^{238}U (96 % их стартовой массы).

О ВОСПРОИЗВОДСТВЕ ДЕЛЯЩИХСЯ ВЕЩЕСТВ

Рассмотрим характеристики, определяющие возможность воспроизводства делящихся веществ в реакторе на тепловых нейтронах. Возможность начального воспроизводства делящихся веществ в первом приближении определяется выражением:

$$N_{vos} / N_{pot} = (\sigma_8 \times n_8) / (\sigma_5 \times n_5) \qquad (4)$$

где σ – сечение захвата нейтронов нуклидом i; n – количество ядер нуклида i в твэле; N_{vos} – скорость воспроизводства делящихся веществ; N_{pot} – скорость потери делящихся веществ.

При равенстве величин N_{vos} и N_{pot} количество делящихся веществ в реакторе будет неизменным. Для ядер ^{235}U и ^{238}U такое состояние достигается при содержании ^{235}U в смеси равном 0.4 % и чисто тепловом спектре нейтронов. Такой идеализированный реактор может работать. Но в реальном реакторе имеются дополнительные потери нейтронов, которые заставляют повышать содержание ядер ^{235}U в топливе. Самое главное состоит в том, что составляющая потерь нейтронов в продуктах деления при стационарной работе реактора (около 11 – 12 %) превышает избыток нейтронов в акте деления для идеализированной смеси (~ 7 %).

Примерно такое же положение наблюдается и при замене ^{235}U на ^{239}Pu. Большее число вторичных нейтронов при делении ^{233}U позволяет обеспечить хорошее воспроизводство в системе ^{232}Th - ^{233}U. Технические трудности, снижающие ценность такой системы будут рассмотрены ниже.

О СНИЖЕНИИ ПОТЕРЬ НЕЙТРОНОВ В ПРОДУКТАХ ДЕЛЕНИЯ

Считается, что потери в продуктах деления реакторов на тепловых нейтронах неустранимы. На самом деле такое положение верно лишь наполовину. Неустранимыми являются потери в долгоживущих и стабильных продуктах деления.

Потери в ^{135}Xe, на долю которого приходится более половины потерь в продуктах деления, можно многократно уменьшить. Несложно оценить, что в этом случае условие воспроизводства делящихся материалов становится близким к требуемому, даже для топлива с урановой сырьевой компонентой.

Технология уменьшения потерь нейтронов в ^{135}Xe [3] состоит в том, что изготавливается несколько комплектов твэлов реактора. Каждый из комплектов работает в реакторе в течение времени Тр, замещается на ходу на твэлы других комплектов и выдерживается вне реактора в течение времени Тв. Авторы называют такой режим работы реактора динамическим нагружением.

Время Тр должно быть близко к величине периода полураспада ^{135}Xe, или меньше его, а время Тв должно быть большим нескольких периодов полураспада ^{135}Xe.

На рисунке 1 показаны изменения доли поглощения нейтронов в ^{135}Xe во время работы реактора в описанном режиме по отношению к образовавшемуся за соответствующее время ^{135}I. Приведены два варианта для потоков нейтронов $5\cdot10^{13}$ и $2\cdot10^{14}$ н/см^{2}с.

На рисунке 2 показано изменение содержания ^{135}Xe и ^{135}I в ходе выдержки по отношению к образовавшемуся количеству ^{135}I после работы реактора длительностью $Tp = 4$ часа при тех же потоках нейтронов.

Из этих рисунков видно, что при длительности работы твэлов в реакторе около 4 часов и выдержке вне реактора более 50 часов потери нейтронов в ^{135}Xe уменьшатся в 8-15 раз в сравнении с режимом стационарной работы реактора.

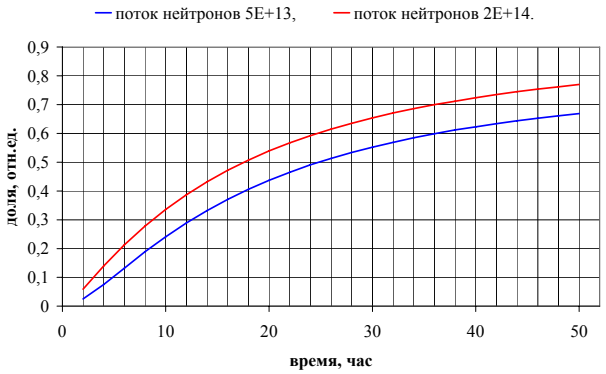


Рисунок 1. Зависимость поглощения нейтронов в ^{135}Xe от времени работы Тр и потока нейтронов

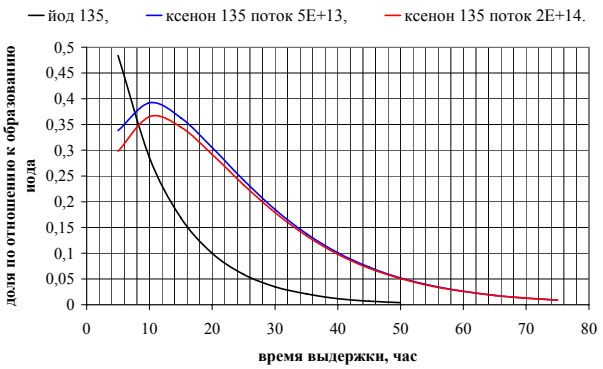


Рисунок 2. Зависимость от времени выдержки Тв содержания ^{135}I и ^{135}Xe по отношению к образованию ^{135}I при Тр = 4 часа.

Снижаются и потери нейтронов в промежуточных ядрах цепочек образования вторичного топлива (^{233}Th, ^{233}Pa, ^{239}U, ^{239}Np). Причем, если ^{239}Np успевает преобразоваться в ^{239}Pu за время выдержки вне реактора *Тв*, то для ^{233}Pa в этом процессе определяющим является отношение времен работы *Тв/Тр*. Если *Тв/Тр* = 10, то распад ^{233}Pa занимает ~ 90 % времени работы реактора. Соответственно, происходит сокращение потерь нейтронов в ^{239}Np, и, кроме того, ускоряется эффективное поступление нового ^{233}U в активную зону реактора.

МОДИФИКАЦИЯ МЕТОДА ЧАСТИЧНЫХ ПЕРЕГРУЗОК

Режим динамического нагружения создает предпосылки для резкого повышения эффективности известного в реакторной технологии режима частичных перегрузок топлива, преобразованию его в качественно новое технологическое решение. Режим частичных перегрузок, как правило, используют для повышения выгорания в зонах с меньшим потоком нейтронов. Рассмотрим особенности модифициро-

ванного решения с точки зрения повышения воспроизводства делящихся веществ. Авторы называют такой режим работы реактора суперпозицией зон.

В общем случае, реактивность любого реактора в ходе кампании заметно изменяется. Это ведет к двум отрицательным факторам. Во-первых, высокое значение реактивности в какой-то момент отрицательно сказывается на безопасности управления реактором, требует дополнительных материальных затрат на систему управления и управление ею. Во-вторых, снижение реактивности до некоторого предельного значения заставляет прекращать работу реактора.

Предлагаемое техническое решение [4] можно сформулировать так: Кампанию реактора следует вести так, что на некоторых ее временных участках реактивность становится отрицательной за счет высокого воспроизводства делящихся веществ. Общую длительность компании следует разделить на несколько временных участков длительностью *Тм* таким образом, что величина средней реактивности суммы всех временных участков в любой момент от нуля до *Тм* остается большей, но близкой к заданной положительной оперативной реактивности. В начальный момент работы реактора в реактор загружают, равномерно по его активной зоне, равные доли топлива из каждого временного участка, соответствующего данному участку, по крайней мере, по концентрации делящихся веществ и источников вторичного топлива. После отработки реактором времени *Тм* выгружают ту часть топлива, которая соответствует максимальному выгоранию, а на его место устанавливают свежее топливо.

Таким образом, при работе реактора в его активной зоне будут одновременно происходить процессы из различных временных отрезков его кампании. Можно сказать, что процессы, происходящие с топливом от момента его загрузки до окончательной выгрузки, соответствуют развернутому описанию кампании, а реальная работа реактора есть результат свертки этих процессов.

Равноценное размещение топлива нескольких временных зон можно получить путем размещения твэлов различных зон в одной тепловыделяющей сборке. Каждая временная зона может быть представлена в тепловыделяющей сборке одним или несколькими твэлами. Твэлы каждой из зон следует разместить в одинаковом положении относительно окружающего их источника тепловых нейтронов. Таким условиям соответствует размещение твэлов в кольцевой зоне, находящейся на заданном радиусе от центра ТВС.

Следует отметить, что в случае работы с воспроизводством близким к единице, перестановка твэлов из одного места в реакторе в другое не требуется. Во всех его местах сохраняется близкое к начальному содержание делящихся веществ.

Для обеспечения максимальной эффективности метода суперпозиции зон необходимо перегрузку отработанного топлива на свежее вести непрерывно и равномерно в течение времени *Тм*. Именно в этом случае будет достигнуто максимальная равномерность реактивности реактора, будет обеспечена минимальная потребность в делящемся веществе, закладываемом в активную зону.

Изменение реактивности в реакторе на природном уране при разделении кампании на 5 временных участков, представлено на рисунке 3.

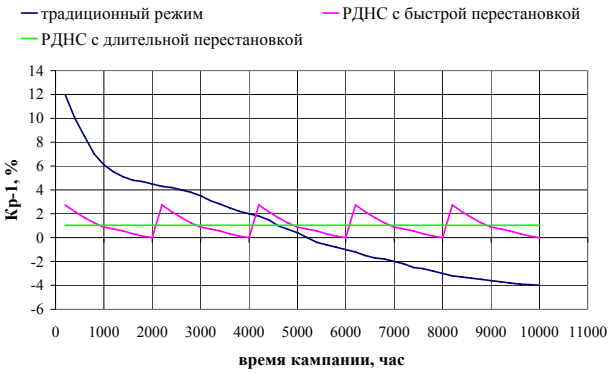


Рисунок 3. Изменения реактивности в ходе кампании реактора

В развернутом состоянии реактивность изменяется от максимального значения +12 % до минимального значения –4 %. В работе реактора (в свернутом состоянии), при быстрой смене отработанного топлива, реактивность меняется от максимального значения +2.5 % до минимального значения +0.03 %. Колебания реактивности уменьшатся при увеличении числа временных зон разбиения и при продлении времени перегрузок до величины *Тм*.

Работу реактора с динамическим нагружением и суперпозицией зон обозначим как РДНС.

РАСЧЕТ ХАРАКТЕРИСТИК РЕАКТОРОВ РДНС

Были выполнены предварительные расчеты характеристик реакторов, работающих с использованием технологии динамического нагружения и суперпозиции зон.

Важной частью этих работ было создание программы расчета преобразований топливных нуклидов в кампании с учетом режима динамического нагружения. Программа разработана в одногрупповом приближении с возможностью коррекции сечений ^{238}U и ^{232}Th для учета изменения эффективности поглощения нейтронов этими нуклидами за счет резонансного поглощения. Временные преобразования топливных материалов рассчитываются методом конечных разностей во время работы реактора и аналитически во время выдержки топлива вне реактора.

Соотношения между количествами топливных и конструкционных компонент в реакторе задавались на основе модельной конструкции реактора, включающей в себя геометрию и материальный состав

твэлов, их расположение в ТВС, расположение ТВС в активной зоне, материальный состав замедлителя и отражателя, геометрию активной зоны и отражателя.

Проводился расчет такого реактора по программе MCNP. В результате расчета получались исходные данные для программы преобразований состава топлива по коррекции поглощения нейтронов в ^{238}U и ^{232}Th, утечке нейтронов, поглощению нейтронов в конструкционных материалах.

На основании расчетов по этим программам проводились выбор и оптимизация конструкции реактора и режимов его работы, пригодного для тех или иных целей.

ПРИМЕРЫ КАМПАНИЙ РДНС

Рассмотрим вначале примеры использования режимов динамического нагружения и суперпозиции зон для реакторов с топливом в виде природного урана и с циклом "^{233}U - ^{232}Th". Конструктивные параметры этих реакторов опишем с помощью коэффициента потерь, включающего в себя потери нейтронов в конструкционных материалах и на утечку. Примем $K_{пот}$ = 3 %.

Окончание работы реактора с топливом из природного урана в традиционном режиме задается достижением некоторого уровня положительной реактивности, позволяющего избежать попадания в йодную яму при маневре мощностью. Достижимое выгорание и использование природного сырья в ходе кампании находятся вблизи 1 %. Остаточное количество делящихся веществ в конце кампании находится на уровне ~ 70 % от стартового. Максимально использование природного сырья в рециклинге составляет около 3 % и достигается при 20 тактах рециклинга. Длительность кампании при потоке нейтронов, равном $2\cdot10^{14}$ н/см^{2}с, около 4000 часов. Для достижения максимальной длительности кампании коэффициент Krez8, равный отношению общего поглощения нейтронов в ^{238}U к поглощению в нем тепловых нейтронов, должен быть небольшим (около 1.1).

Длительность кампании реактора в режиме динамического нагружения и суперпозиции зон в 6 раз выше длительности традиционной кампании при том же потоке нейтронов. В таком режиме потери нейтронов в ^{135}Xe уменьшены на 4 %, выше выгорание (6.5 %), выше коэффициент воспроизводства. В рециклинге достигается достаточно высокое использование исходного топлива (~18 %).

Особенностью кампании является то, что в начале развернутого отображения кампании устанавливается отрицательная реактивность, а после работы реактора в течение 2000 часов достигается максимальное значение реактивности. Это обусловлено увеличением коэффициента Krez8.

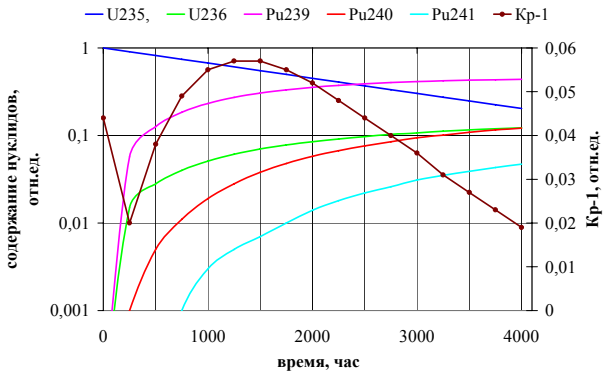


Рисунок 4. Изменение состава нуклидов в топливе в традиционном режиме. Начальное топливо – природный уран

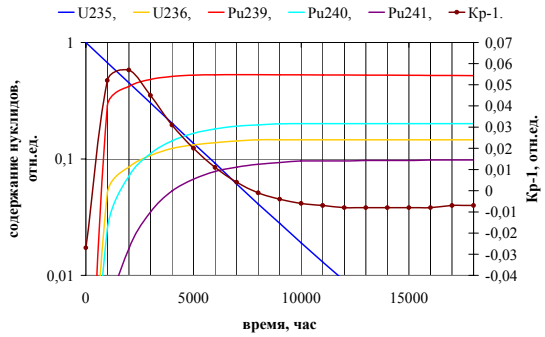


Рисунок 5. Изменение состава нуклидов в топливе в режиме РДНС. Начальное топливо – природный уран

Представленные выгорание и величина использования топливного сырья близки к максимально достижимым для этого топлива. Характеристики реактора с природным ураном представлены на рисунках 4 и 5.

В реакторе с циклом "^{233}U - ^{232}Th", работающем в традиционном режиме, проявляется существенная роль высокого периода полураспада протактиния 233, который сдерживает поступление в реактор делящегося вещества. Этим фактором обусловлено несколько типов режимов работы в зависимости от потока нейтронов. При заданном начальном содержании делящихся веществ в топливе, заданной длительности кампании возможна работа с равным количеством делящихся веществ в начале и конце кампании при потоке нейтронов не выше определенного значения Ф1. При повышении потока сверх Ф1, вначале падает количество делящихся веществ к концу кампании, а затем при потоке Ф2 появляются временные участки с отрицательной реактивностью. В диапазоне потоков Ф2 – Ф3 возможна работа реактора с использованием режима суперпозиции зон, при более высоком потоке средняя реактивность в кампании становится отрицательной (работа не возможна).

В режиме с динамическим нагружением и суперпозицией зон становится возможной работа при потоке нейтронов большем Ф3 с эффективностью

большей, чем в традиционном режиме при потоке меньшем Ф1.

Можно выделить 2 вида работ с топливом на $^{232}Th + ^{233}U$: 1. расширенное воспроизводство делящихся веществ, 2. оптимальный энергетический режим. Использование топливного сырья в обоих случаях – 100 %.

Для реализации работ с расширенным воспроизводством требуется меньшее содержание делящихся веществ в начальном топливе и меньшая длительность кампании. Время такой кампании определяется минимально допустимой оперативной реактивностью. Характерное выгорание топлива в кампании около 10 %.

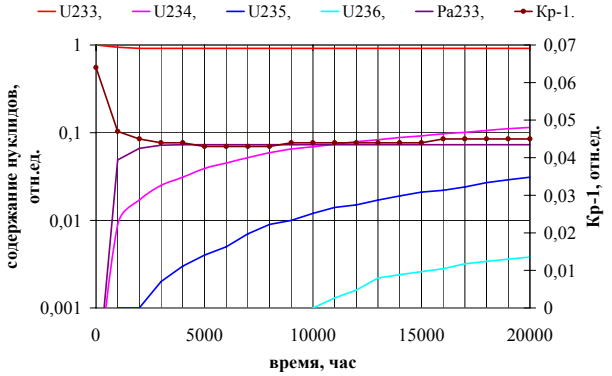


Рисунок 6. Изменение состава нуклидов в топливе в традиционном режиме. Источник делящихся веществ в топливе – ^{232}Th

Максимальная длительность кампании в энергетическом режиме достигается при равенстве конечного количества делящихся веществ начальному. Характерное выгорание топлива в такой кампании около 20 %.

Традиционный режим и энергетический режим с динамическим нагружением и суперпозицией зон для реактора с топливным циклом "^{233}U - ^{232}Th" представлены на рисунках 6 и 7.

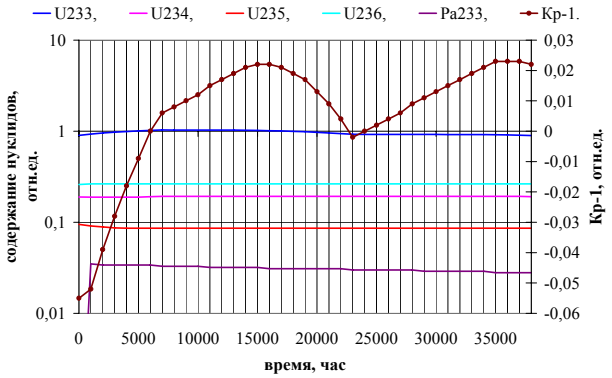


Рисунок 7. Изменение состава нуклидов в топливе в равновесном режиме РДНС. Источник делящихся веществ в топливе – ^{232}Th

Вариант конструкции реактора РДНС

Геометрия ячейки реактора, включающая ТВС из 40 твэлов (варианты с 32, 36 твэлами) типа ВВЭР-1000, каналы для прохода теплоносителя и замедлитель представлена на рисунке 8. Особенностью такого реактора является совместное использование тяжелой воды и графита в замедлителе и отражателе.

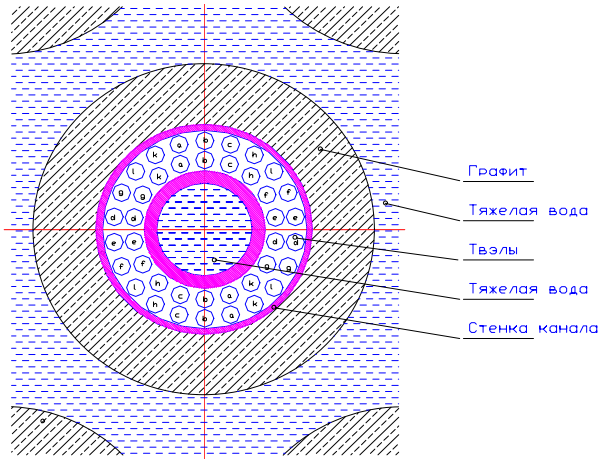


Рисунок 8. Ячейка реактора РДНС

Такая композиция имеет ряд ядерно-физических преимуществ как перед чисто графитовым вариантом, так и перед чисто тяжеловодным. Преимущества в сравнении с графитовым вариантом заключаются в экономии нейтронов. В сравнении с тяжеловодным вариантом преимущества заключаются в возможности варьирования коэффициентами Krez8 и Krez2. Этим обеспечивается достижение лучших характеристик кампании и рециклинга по использованию топливного сырья.

Кроме того, такая конструкция обеспечивает возможность снижения температуры замедлителя в сравнении с обоими вариантами. Тем самым, повышается качество замедлителя в сравнении с обоими вариантами, уменьшаются потери тепла при прокачке тяжеловодного замедлителя.

Рассматривались реакторы с различным количеством ТВС в них и различной высотой ТВС. Реакторы можно разделить на 2 группы. Первая группа предусматривает создание реактора высокой мощности (2500 – 3000 МВт тепловых). В этом случае в реактор устанавливалось до 400 ТВС. Вторая группа предназначена для создания реактора минимальной мощности (до 500 МВт тепловых, при рабочем потоке нейтронов $2 \cdot 10^{14}$ н/см^{2}с).

В качестве теплоносителя использовались варианты с тяжелой водой и висмутом.

Зависимость характеристик РДНС от содержания тория в топливе

Важным вопросом технологии реакторов РДНС является то, при каком минимальном содержании ^{238}U в смеси сырьевых компонент ^{238}U и ^{232}Th обеспечивается их полное использование. Были прове-

дены расчеты реакторов с отношениями масс ^{232}Th / ^{238}U в топливе, равными 0, 0.125, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0 и равновесными концентрациями в кампании основных делящихся компонент топлива и связанных с ними нуклидов. Расчеты велись таким образом, чтобы концентрации ^{233}U, ^{239}Pu, ^{241}Pu, ^{234}U, ^{240}Pu в начале кампании равнялись их концентрациям в конце кампании. Концентрация ^{235}U в начале кампаний может быть больше его концентрации в конце кампании. Общим требованием к таким кампаниям было равенство оперативной реактивности 1β.

Основные результаты данных расчетов представлены в таблице 1. Можно отметить следующие особенности данных реакторов:

- Полное использование топливного сырья достигается приблизительно при содержании ^{232}Th в смеси ^{238}U и ^{232}Th, равном ~ 20 %.
- Ториевый коэффициент Krez2 уменьшается с ростом концентрации ^{232}Th в топливе, а урановый Krez8 при этом увеличивается.
- Допустимые потери нейтронов на утечку и в конструкционных материалах растут с увеличением доли ^{232}Th в топливе.
- Концентрация делящихся веществ в топливе растут с увеличением содержания ^{232}Th в топливе от 0.67 % до 1.48 %.
- Мощность реактора при увеличении содержания ^{232}Th в топливе растет незначительно (в 1.14 раза)
- Содержание ^{235}U в добавке урана в ходе рециклинга (начальная концентрация в коампании) становится меньше его содержания в природной смеси при содержании ^{232}Th в топливе большем 20 %.

Таблица 1. Характеристики реакторов РДНС с оптимальной кампанией. (концентрации - по начальному и конечному состояниям)

Сод Th, %	0	12.5	25	50	75	100
C dv, %	.67	.76	.81	1.04	1.40	1.48
U 233	0	.298	.502	.692	.768	.921
U235	.383/.001	.196/.026	.077/.046	.063/.06	.118	.079
Pu 239	.617	.506	.421	.245	.114	0
Pu 241	.118	.098	.082	.048	.025	0
U 234	0	.0566	.10	.131	.165	.182
Pu 240	.2429	.2014	.169	.098	.045	0
Выгорание, %	6.25	7.23	12.56	15.97	19.59	17.2
Ndv остаток	.6582	.8438	.9703	.9975		1.0006
Сод U^5 в добавке	4.1 %	2.7 %	0.4 %	0.04 %		0
Тр / Тв	5 / 70	5 / 70	5 / 70	5 / 70	5 / 50	5 / 70
Потери, %	3.0	2.9	2.8	3.4	4.9	5.6
$K_{рез}2$		1.6	1.519	1.381	1.3656	1.3
$K_{рез}8$	1.4524	1.55	1.66	1.94	2.4870	
Исп сырья, %	18.84	46.0	100	100	100	100
Т кампании, час	15000	16000	24000	30000	30000	30000
$\sum m_{дв}$, кг	193.18	215.23	226.06	281.12		381.74
$W_{теп}$, МВт	2550	2633	2595	2795		2901

Из этих данных следует, что реакторы с содержанием ^{232}Th в топливе большем 20 % пригодны для полного использования топливного сырья. На рисунке 9 представлено изменение состава топливных нуклидов в реакторе со смешанным ^{238}U и ^{232}Th топливным сырьем.

На рисунке10 представлены изменения скоростей выгорания нуклидов из состава цепочек ^{238}U и ^{232}Th в зависимости от содержания ^{232}Th в смеси ^{238}U и ^{232}Th. Видно, что соответствие скоростей выгорания нуклидов этих двух цепочек их содержанию в земной коре достигается при содержании ^{232}Th в топливе равном 70 %.

Рассмотрим некоторые технические характеристики реактора РДНС на примере кампании, отображенной на рисунке 9. Основными характеристиками такого реактора являются тепловая мощность и потребность в топливе.

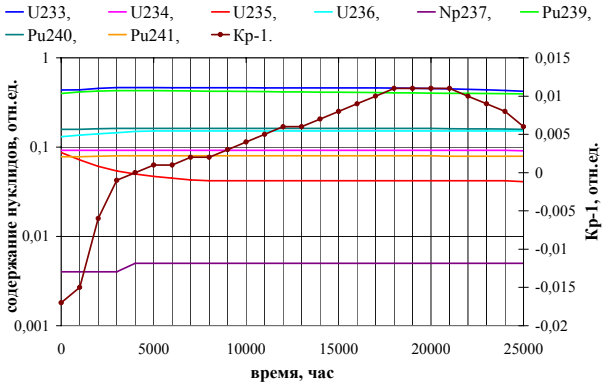


Рисунок 9. Изменение состава нуклидов в топливе в равновесном режиме РДНС. Источник делящихся веществ в топливе – ^{232}Th + ^{238}U

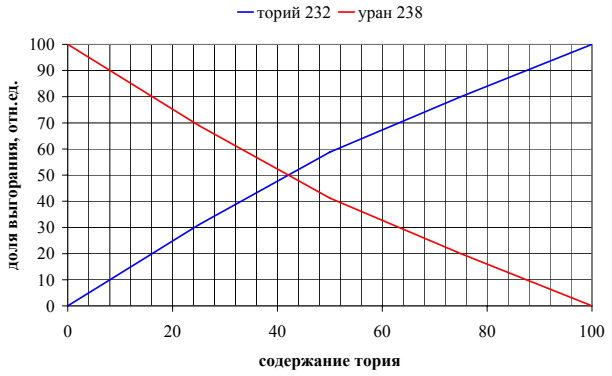


Рисунок 10. Зависимости скоростей выгорания цепочек уранового и ториевого сырья от содержания тория в топливе

При указанном среднем потоке нейтронов в твэлах ($2 \cdot 10^{14}$ н/см^{2}с) тепловая мощность реактора составляет 2600 МВт.

При такой мощности ежегодно сгорает 1093 кг топлива. При уровне выгорания 12.5 % требуется ежегодно заменять 8742 кг топлива. Общее количество топлива в реакторе 27909 кг.

Таким образом, ежегодно требуется подвергать переработке и вновь устанавливать 31.3 % топлива. При количестве ТВС в активной зоне равном 369 частота замены ТВС составляет 0.32 ТВС/день.

В состав каждой порции свежего топлива входят рециклируемые компоненты (^{233}U, ^{234}U, ^{235}U, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu) и добавки топливного сырья (^{235}U, ^{238}U и ^{232}Th).

Обеспечение состава топлива различных зон суперпозиции

Рассмотрим особенности ввода в эксплуатацию реакторов РДНС. Для первого запуска такого реактора необходимо, чтобы в его активной зоне было равномерно загружено топливо различных временных частей его рабочей кампании. В природе нет многих нуклидов, которые необходимы для подобного запуска реактора. В этом отношении реакторы РДНС, в принципе, схожи с быстрыми реакторами, реакторами традиционного ториевого цикла на тепловых нейтронах и даже урановыми реакторами на тепловых нейтронах с повышенным обогащением урана.

Однако, требование по разнообразию состава различных зон ставятся, по-видимому, впервые. Как удовлетворить эти требования на практике?

Можно было бы использовать отработанное топливо существующих реакторов, но для масштабного применения он неприемлем – в отработанном топливе существующих реакторов нет компонент ториевой цепочки.

Проще всего использовать режим динамического нагружения (без суперпозиции зон) со стартовым топливом, имеющим несколько большую концентрацию делящихся веществ, чем в РДНС, и теми же сырьевыми компонентами. Для выработки нужных по составу нуклидов потребуется укороченная по времени кампания. Такая кампания представлена на рисунке 11. В начальный состав топлива в данном случае входят ^{235}U, ^{238}U и ^{232}Th, т.е. смесь слабо обогащенного урана и тория.

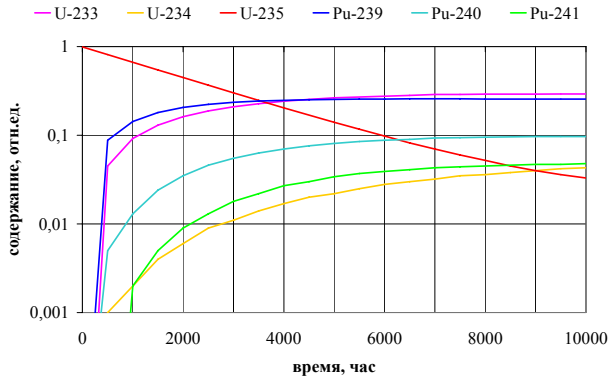


Рисунок 11. Изменение концентраций топливных нуклидов в смесеобразующем реакторе, работающем в режиме динамического нагружения

Для получения требуемого состава топлива различных зон режима суперпозиции необходимо разделить полученное в смесеобразующем реакторе топливо на соответ-ствующее число частей и дополнить эти части необходимым количеством ^{238}U и ^{232}Th.

Расчет характеристик развития энергетики на базе реакторов РДНС

На основе этих данных, задавая требуемый темп ввода новых АЭС с требуемой мощностью можно получить годовую потребность в уране и годовую разделительную работу по обогащению урана до нужной величины. Годовая потребность потребность в обогащенном уране составит:

$$M_U = N \times M_{аз} \times (Тв_0 + Тр_0) / Тр_0 \qquad (5)$$

где N – число вводимых реакторов в 1 год, $M_{аз}$ – масса обогащенного урана в активной зоне, $Тв_0$ – время выдержки твэлов данного реактора вне активной зоны, $Тр_0$ – время динамической работы твэлов данного реактора в активной зоне.

Если темп ввода АЭС с мощностью 1000 МВт (эл) составляет N = 50 шт/год, Тр = 5 час, Тв = 15 час, содержание ^{235}U в отвалах 0.1 %, то годовая потребность в обогащенном уране будет 15200 тонн, в природном уране – 30400 тонн, годовая разделительная работа – 20600 тонн ЕРР.

Эти потребности существенно меньше потребностей для ввода в действие быстрых реакторов [5]. Так по природному урану – примерно в 3 раза, по разделительным работам – в 10 раз.

Основная сложность в обеспечении топливом реакторов РДНС состоит в задержке выдачи конечной продукции смесеобразующим реактором. Дело в том, что этот реактор должен непрерывно, без выдачи промежуточной продукции, работать в течение времени, определяемом соотношением:

$$T_1 = \frac{T_{K1}(T_{P1} + T_{B1})}{T_{P1}} \quad (6)$$

А общее время работы этого реактора для полного обеспечения топливом реактора РДНС составит величину:

$$T_2 = T_1 \cdot \frac{(T_{B0} + T_{P0}) \cdot T_{P1}}{(T_{B1} + T_{P1}) \cdot T_{P0}} \quad (7)$$

Для снижения непроизводительных затрат в работе смесеобразующих реакторов необходимо проводить как уменьшение длительности кампании этих реакторов, уменьшение отношения $Тв_1 / Тр_1$, так и стремиться к уменьшению $Тв_0 / Тр_0$.

Бо́льшие перспективы в положительном решении данной задачи имеют реакторы с высоким содержанием ^{232}Th в топливе, несмотря на то, что для них потребуется проводить несколько большее обогащение стартового топлива смесеобразующего реактора.

Решению задачи может способствовать использование ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu из отработан-ного топлива существующих реакторов на тепловых нейтронах, ведение режима с расширенным воспроизводством самих реакторов РДНС.

Однако, задержка в получении требуемого топлива для ведения режима суперпозиции зон не является "глобальным" недостатком. Начиная с момента запуска смесеобразующего реактора потребитель получает энергию в количестве равном энергии, вырабатываемой будущим реактором РДНС. В ходе работы смесеобразующего реактора снижается полнота использования топливного сырья (до уровня ~ 25 – 35 %).

ПРЕИМУЩЕСТВА ТЕХНОЛОГИИ РДНС

Ядерная безопасность эксплуатации реактора. Оптимальную с экономической точки зрения работу реактора, в которой обеспечивается равенство количества делящихся веществ в начале и конце кампании с высоким выгоранием можно легко свести к такому режиму, когда оперативная реактивность не будет превышать заданной величины, например, 1β или 0.5β.

Ядерная безопасность топливного цикла. Реакторы РДНС работают на топливе с малой концентрацией делящихся веществ. Для того, чтобы поддерживалась ядерная реакция в таком топливе необходимы специальные условия, осуществляемые только в соответствующем реакторе. Без такого реактора возникновение СЦР невозможно, в отличие, например, от топлива быстрых реакторов. Довольно высока концентрация делящихся веществ и в топливе многих реакторов на тепловых нейтронах.

Опасность распространения оружейных ядерных материалов. Низкая концентрация делящихся материалов и кампания с повторным использованием всех материалов топлива (кроме продуктов деления) предопределяют весьма низкое качество данного топлива на всех стадиях работ с ним в качестве оружейного материала.

Радиационная безопасность обращения с топливом. Большое время работы твэлов, обусловленное частой выдержкой их вне реактора, уменьшает среднюю мощность излучения в конце кампании в сравнении с твэлами традиционных реакторов. Это позволяет сводить время между окончанием работы твэлов и началом их переработки до минимума. Определяющим в выборе этого промежутка времени становится требование полноты распада ^{233}Pa.

Активность продуктов деления можно определить по формуле для мгновенного деления: $A = C * t^{-1.2}$, проинтегрировав по времени работы реактора. Так как активность твэла будет обусловлена в основном последними моментами работы реактора, то такие вычисления обеспечат достаточную точность. Расчеты показывают, что твэл РДНС будет иметь примерно в 10 раз меньшую активность, чем твэл традиционного реактора с аналогичным интегралом делений при выдержке после работы, равной 4-6 месяцам.

Для уменьшения активности твэла традиционного реактора до такой величины потребовалась бы выдержка в течение нескольких лет (более 10).

Безопасность хранения отходов топливного цикла. Большая длительность кампании РДНС и исключение из топлива при переработке только продуктов деления, по существу, реализуют режим трансмутации наиболее опасных элементов для долговременного хранения (^{237}Np, ^{241}Am, ^{242}Cm) в ходе рециклинга, если после определенного цикла кампаний удалять эти нуклиды. Если же этого удаления не проводить, то реализуется режим возврата к активности исходного топлива.

Предпосылкой реализации такой возможности является стабильность содержания ^{241}Am уже в ходе одной кампании, и достижение стабильного уровня ^{237}Np после 4-5 циклов кампаний без существенного влияния этих нуклидов на размножающие свойства реактора.

ОЦЕНКА ЭКОНОМИКИ.

Были проведены расчеты потребностей в природном уране и тории, разделительной работе для запуска реакторов РДНС и объемов переработки отработанного топлива в варианте полного обеспечения энергии АЭС данными реакторами к концу 21 века. При равных конечных мощностях с вариантом [5], для РДНС потребуется в 3-5 раз меньше природного урана, уменьшится потребность в разделительной работе в 10 раз, и в 2.5 раза сокращается объем переработки отработанного топлива. Данные не оптимизированы, но и в этом случае, около 25 – 35 % АЭС могут быть построены за счет сокращения указанных работ.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Приведены основные положения предлагаемой технологии работы реакторов на тепловых нейтронах, обеспечивающей возможность полного исполь-

зования природных запасов урана и тория без обращения к технике быстрых или иных реакторов.

Основа технологии состоит в устранении паразитного поглощения нейтронов в ^{135}Xe с помощью циклической работы твэлов в реакторе. Такой режим дополнительно позволяет уменьшить потери нейтронов в цепочках образования вторичного топлива, а также ускорить ввод в активную работу ^{233}U. Существенно повысить возможности реакторов на тепловых нейтронах становится возможным при использовании способа суперпозиции зон, когда нейтроны той части активной зоны, в которой наблюдается избыточная реактивность, направляются в зону с повышенным коэффициентом воспроизводства. Приведены требования к конструкции ТВС, обеспечивающие равноценность различных "временных" частей такой активной зоны.

Показано, что на топливе в виде природного урана может быть реализовано использование не более 17 % исходного сырья при потоке $2 \cdot 10^{14}$ н/см^{2}с.

При использовании динамического нагружения и суперпозиции зон топливо на основе ^{232}Th + ^{233}U обеспечивает полное исполь-зование сырья при содержании ^{232}Th в сырьевой части данной смеси превышающем 20 %.

Реакторы РДНС позволяют обеспечить высокую степень их безопасности и высокую экономичность всего цикла работ от добычи сырья до захоронения отходов.

Литература

1. Стратегия развития атомной энергетики России в первой половине XXI века. Основные положения. Министерство Российской Федерации по атомной энергии. Москва 2000. 36 стр.
2. Ian Hore Lacy, "Nuclear Electricity", Sixth edition, August 2000, ISBN 0-9593829-8-4
3. В.М.Котов, Л.Н.Тихомиров. Способ воспроизводства делящихся веществ в ядерном реакторе на тепловых нейтронах. Решение о выдаче предварительного патента Республики Казахстан по заявке на изобретение № 2002/0334.1 от 21 марта 2002 г.
4. В.М.Котов. Способ воспроизводства делящихся веществ в ядерном реакторе. Предварительный патент Республики Казахстан № 13356 от 28.05.2003 по заявке на изобретение № 2002/0043.1 от 16 января 2002 г.
5. Пономарев-Степной Н.Н., Алексеев П.Н., Давиденко В.Д. и др. Сравнение направлений развития ядерной энергетики в XXI в. на основе расчетов материальных балансов. М, "Атомная энергия", т 91 вып.5 (ноябрь 2001 г).

ЖЫЛУЛЫҚ НЕЙТРОНЫНДА УРАН ЖӘНЕ ТОРИЙ ШИКІЗАТТАРЫН ТОЛЫҒЫМЕН ПАЙДАЛАНУДАҒЫ ЯДРОЛЫҚ РЕАКТОРЛАРДЫҢ ТҰЖЫРЫМДАМАСЫ

[1)]Котов В.М., [1)]Тихомиров Л.Н., [1)]Жұмаділова Ж.А.,[2)]Котов С.В.

[1)]Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы, Курчатов қаласы
[2)]ҚР ҰЯО атом энергетика институты, Курчатов, Қазақстан

Бұл жұмыста 135 ксенонда нейтрондарды қармау және 233 уранының белсенді аймағына «үдеудің» түсуін жою есебінен жылу нейтронындағы реакторларда уран және торий шикізаттарын толық пайдалану жетістіктерінің мүмкіндіктері көрсетілген. Оңтайлы тиімділікке жетуді қамтамасыз ететін реактор жұмысының ерекшеліктері сипатталған, әр түрлі отындық композицияларға және ұсынылған технологияның қосымша артықшылықтарына мысалдар келтірілген.

THERMAL REACTORS WITH COMPLETE UTILIZATION OF URANIUM AND THORIUM RAW

[1)]V.M. Kotov, [1)]L.N. Tikhomirov, [1)]Zh.A. Zhumadilova,[2)]S.V. Kotov

[1)]National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan, Kurchatov
[2)]Institute of Atomoc Energy NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The effort demonstrates the possibility of having a complete utilization of uranium and thorium raw in thermal reactor due to elimination of neutron capture in xenon 135 and ‘facilitation’ of uranium 233 getting into the core. Features of the reactor operation providing for positive results are described, examples are given for various fuel compositions as well as additional advantages of the proposed technology.

УДК 621.039.58

ПОВЫШЕНИЕ ВНУТРЕННЕЙ ЗАЩИТЫ ИМПУЛЬСНОГО РЕАКТОРА ОТ ОШИБОЧНЫХ ИЛИ ПРОТИВОПРАВНЫХ ДЕЙСТВИЙ

Горин Н.В., Щербина А.Н.

Российский федеральный ядерный центр - Всероссийский НИИ технической физики, Снежинск, Россия

Описаны физические особенности генерирования вспышек делений реактором с сильным внутренним источником нейтронов. Показано, что параметры вспышки определяются, главным образом, скоростью ввода реактивности, небольшие погрешности в калибровке стержней несущественны, безопасность при возникновении аварийных ситуаций, в том числе из-за ошибочных или противоправных действий персонала, обеспечена физическими процессами, исключающими реализацию всей введенной аварийной реактивности в одной вспышке.

Устойчивости ядерных реакторов против человеческих ошибок и противоправных действий всегда уделяли повышенное внимание, так как известно, что большинство аварий на реакторах объясняются человеческим фактором – ошибками операторов [1]. Если обеспечить внутреннюю защиту реактора не только от ошибочных, но и от противоправных действий, в том числе даже персонала, обладающего наиболее полными знаниями и лучшими возможностями, то может быть создан относительно безопасный реактор, для которого последствия любых аварий будут локализованы в реакторном здании. Однако полная безопасность невозможна, тем более - импульсного реактора, ибо он эксплуатируется в той области реактивности, которая является аварийной для других типов реакторов. Технические меры защиты частично могут быть использованы на тех импульсных реакторах, где процесс генерации вспышки относительно медленный ~0,1 с. К таким реакторам, в частности относится действующий ИГР [2] и планируемый МИГР [3], однако и для них целесообразно найти дополнительные способы повышения безопасности. Один из них – режим "Мощность" с сильным внутренним источником нейтронов, реализованный на российском реакторе БАРС-5 [4].

Основная цель доклада – привлечь внимание специалистов НЯЦ РК к проблемам безопасности исследовательских реакторов и их защиты от противоправных действий.

Серьезная ядерная авария на импульсном реакторе обусловлена вводом и реализацией во вспышке слишком большой избыточной реактивности – реактивности выше мгновенной критичности. Известно, что ограничить ее реализацию можно лишь при наличии сильного внутреннего источника нейтронов, который может своевременно подключить защитный механизм – тепловое самогашение, что снижает тяжесть аварийной ситуации и повышает самозащиту реактора. Внутренний источник состоит, в основном, из нейтронов, появляющихся при распаде ядер-предшественников запаздывающих нейтронов, нейтронов спонтанного деления урана и нейтронов от внешнего источника, вызвавших акты деления в активной зоне. Сильным считают источник, для которого выполняется условие - $S_в l >> 1$, где $S_в$– внутренний источник нейтронов, l - время жизни мгновенных нейтронов. Такой источник обеспечивает практически 100%-ю вероятность инициирования устойчивой цепи делений даже в состоянии ниже мгновенной критичности. При слабом внутреннем источнике $S_в l << 1$ момент начала теплового самогашения будет определяться вероятностными процессами и может начаться поздно, когда аварийная реактивность уже введена [5,6].

Большинство импульсных реакторов работают в режиме "Ожидание", в котором вначале вводят избыточную реактивность, а затем принудительно инициируют цепочку делений и ожидают формирования вспышки. В этом режиме необходимая избыточная реактивность легко достигается при небольших скоростях ввода, т.к. во время ввода действует "слабый" внутренний источник и реактор может долго не реагировать на увеличение реактивности. Однако режим имеет недостатки, основной из которых связан с тем, что механизм защиты (тепловое самогашение) подключается уже после ввода реактивности и имеется возможность случайного (или целенаправленного в результате противоправных действий) ввода аварийной реактивности, которая будет реализована в одной вспышке.

Для устранения этих недостатков в РФЯЦ–ВНИИТФ создавался другой режим – "Мощность", в котором небольшие излишки во вводимой реактивности были бы незаметными, а внутренняя безопасность была бы обеспечена физическими процессами, исключающими реализацию всей аварийной реактивности в одной вспышке. В этом режиме вначале создают в реакторе сильный внутренний источник нейтронов, инициирующий устойчивую цепь делений, затем вводят ту же реактивность до начала теплового гашения, т.е. защитный механизм подключен уже на этапе ввода реактивности.

При вводе реактивности в условиях сильного источника нейтронный поток будет следовать за ростом реактивности, затем "подключится" тепловое гашение и сформируется вспышка делений. Продолжающийся ввод реактивности не сможет заметно

повлиять на энерговыделение, так как скорость гашения значительно выше скорости ввода. В этом заключена первая важная особенность режима – при генерации вспышки можно вводить требуемую реактивность с небольшим запасом, который нейтрализует возможные погрешности в калибровках стержней, определении состояния мгновенной критичности, нахождении стартовой реактивности и др. Сразу же после колокола вспышки реактор подкритичен относительно мгновенной критичности, и поэтому продолжающийся небольшой ввод реактивности не опасен, хотя ввод большой реактивности может привести к получению второй вспышки. Вторая вспышка и все последующие, если реактивности окажется достаточно, будет гораздо меньше первой, так как чрезвычайно высокий внутренний источник нейтронов от предыдущей вспышки не позволит реализовать большую реактивность. В этом заключена вторая особенность режима "Мощность" – в аварийных ситуациях, когда вводится очень большая реактивность, она реализуется в нескольких маленьких вспышках, а не в одной аварийной, поэтому последствия аварии будут не столь серьезны.

Эксперименты показали, что характеристики вспышек в режиме "Мощность" действительно определяются, прежде всего, скоростью ввода реактивности. Влияние на энерговыделение времени жизни мгновенных нейтронов, стартового уровня мощности, погрешностей в калибровках стержней и др., слабее. Поэтому требуется точно задавать скорость ввода реактивности, а это для разработанных механизмов реактора гораздо легче, чем точно вводить реактивность.

Основное достоинство режима "Мощность" продемонстрируем на примере аварийной ситуации, когда с потолка реакторного зала падает обломок строительного материала, протекает большое количество воды или даже обрушивается потолок, например, при землетрясении или в результате ввода реактивности противоправными действиями. Наиболее опасно, если это будет синхронизовано с моментом перехода реактором состояния мгновенной критичности при генерации максимальной вспышки при скорости ввода 300 β/с.

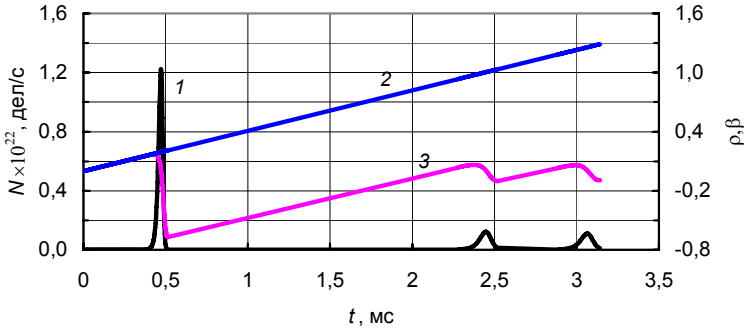


Рисунок 1. Формы вспышек (1), введенная (2) и реализованная (3) избыточные реактивности

Расчетные характеристики вспышек реактора БАРС-5 при работе в режиме "Мощность" для этой ситуации представлены на рисунке 1. Программа расчета верифицирована на параметрах вспышек только в рабочем диапазоне энерговыделения и реактивности и поэтому результаты расчетов аварийной ситуации при большой избыточной реактивности следует рассматривать как оценки. Вычисления прекращены после третьей вспышки, так как общая картина процесса уже понятна. Первая вспышка будет иметь энерговыделение ~$4{,}1\cdot10^{17}$ делений и полуширину ~30 мкс, затем генерируются небольшие вспышки энерговыделением ~10^{17} делений и полушириной ~80-100 мкс. Максимальное допустимое энерговыделение во вспышке БАРС-5 составляет $2{,}5\cdot10^{17}$ делений. К моменту ввода неучтенной избыточной реактивности 1,3β полное энерговыделение составит $6{,}4\cdot10^{17}$ делений, т.е. в ~2,5 раза превысит максимально разрешенное. Последствия аварийной ситуации серьезны – можно разрушить и частично расплавить активную зону, но энерговыделение будет реализовано в нескольких вспышках, а не в одной, взрывного энерговыделения не будет и ударной волны не образуется. Для возникновения столь серьезной аварии необходимы не только большая неучтенная реактивность, но и важен момент ее ввода, который должен быть синхронизирован с переходом реактором состояния мгновенной критичности. В более вероятных ситуациях, когда увеличение реактивности составит несколько десятых β и вряд ли будет достигнута необходимая синхронизация с моментом перехода через мгновенную критичность, аварийной ситуации либо вообще не произойдет, либо ее последствия будут незначительны. Отметим, что при работе реактора в режиме «Ожидание» можно прогнозировать суммарное энерговыделение ~10^{20} делений при вводе и реализации в одной вспышке 1,3β, т.е. на два порядка больше максимально разрешенного (!), что приведет к испарению активной зоны, разрушению реакторного здания и выходу наружу загрязнения.

Реактор ИГР эксплуатируется в режиме, который можно назвать "Самоинициирование" - нечто сред-

нее между режимами "Мощность" и "Ожидание". Для производства вспышки ИГР выводится в состояние запаздывающей критичности на мощность до ~25 Вт, причем исходное положение пусковых стержней определяет величину скачка реактивности при производстве вспышки. После достижения состояния "критика" реактор приводится в подкритическое состояние и из нее удаляется внешний нейтронный источник. В этом (подкритическом) состоянии без источника нейтронов реактор выдерживается ~15 минут, пока системы комплекса готовятся к пуску. Затем пусковые стержни из исходного положения со скоростью ~220 мм/с выводятся из активной зоны до крайнего верхнего положения. Время движения стержней составляет ~6,4 сек. Внешнего принудительного инициирования на реакторе ИГР нет и устойчивая цепочка делений инициируется нейтронами, появляющимися при распаде предшественников запаздывающих нейтронов, образовавшихся при поиске стартового состояния и из-за спонтанного деления урана. При небольших избыточных реактивностях вспышка делений формируется после остановки стержней в крайнем верхнем положении, при избыточных реактивностях ~5β вспышка делений формируется при движении стержней, до достижения ими крайнего верхнего положения. Избыточных реактивностей >5β ввести не удавалось из-за ограниченной скорости перемещения стержней.

Оценим величину внутреннего источника нейтронов на момент генерации вспышки. Примем - $Q_{кр}$ мощность реактора в состоянии "критика" ~25 ватт, $t_{кр}$ время нахождения реактора в состоянии "критика" 1 минута и Δt время выдержки в подкритическом состоянии 1000 сек. В расчетах учтена самая долгоживущая группа запаздывающих нейтронов, вклад остальных групп пренебрежимо мал. Тогда:

$$S_в = Q_{кр} \times t_{кр} \times \beta_i \times \exp(-\Delta t \times \lambda_i) \sim 4 \times 10^4 \text{ дел/с.}$$

При таком способе производства вспышек, на момент начала движения пусковых стержней в активной зоне ИГР имеется концентрация предшественников запаздывающих нейтронов, распад которых обеспечивает "сильный" внутренний источник нейтронов, так как $S_в l >> 1$. Однако, если мощность в состоянии "критика" уменьшить всего в несколько раз, а время выдержки в подкритическом состоянии увеличить на ~10-15 минут, то в активной зоне легко можно создать "слабый" внутренний источник - $S_в \times l << 1$. В пределе величина внутреннего источника нейтронов будет определяться лишь нейтронами, появляющимися при спонтанном делении урана-235 и урана-238 и будет составлять для всей активной зоны, содержащей ~10 кг урана, всего ~20 н/с. В этом случае момент инициирования будет носить статистический характер и защитный механизм может подключиться слишком поздно, когда аварийная реактивность уже введена и на реакторе реализуется наиболее благоприятная ситуация для создания аварии ошибочными или противоправными действиями, при которой весь имеющийся в стержнях запас реактивности может быть реализован в одной вспышке.

Выводы

Для повышения самозащиты импульсного реактора создан режим работы, для которого характеристики вспышек зависят, в основном, от скорости ввода реактивности. Небольшие излишки во вводимой избыточной реактивности несущественны, внутренняя безопасность реактора обеспечена физическими процессами, исключающими реализацию введенной аварийной реактивности в одной вспышке. При ее вводе формируется серия последовательно уменьшающихся вспышек делений, что существенно снижает аварийное энерговыделение.

Следует рассмотреть целесообразность исследования и ввода в эксплуатацию такого режима на ИГР.

Литература

1. Бюллетень МАГАТЭ. - Вена, Австрия, 2001. -Т. 43. -№4.
2. Курчатов И.В., Фейнберг С.М. — Импульсный графитовый реактор ИГР // Атомная энергия. -1964. Т.17. -Вып.6. -С.463-474.
3. Аврорин Е.Н., Горин Н.В., Кандиев Я.З. — Ожидаемые характеристики реакторного комплекса МИГР // Атомная энергия. -2002. -Т.93. -Вып.5. -С.342-348.
4. Снопков А.А., Марков В.Н., Горин Н.В. — Повышение внутренней защиты импульсного реактора против ошибочных или противоправных действий // Атомная энергия. – 2003.- Т.94. -Вып.5. -С.401-405.
5. G.E.Hansen. — Assembly of fissionable material in the presence of a weak Neutron source // Nucl.Sci.Engng. - V8. -№6. -1960. -P 700-719.
6. H.Hurwitz, D.B.MacMillan, J.H.Smith, M.L.Storm. — Kinetics of low source reactor startups. Part I, II. // Nucl.Sci.Engng. -V15 -№2. - 1963. –P 166-196.

ҚАТЕЛІК НЕМЕСЕ ҚҰҚЫҚҚА ҚАЙШЫЛЫҚ ӘРЕКЕТТЕРДЕН ИМПУЛЬСТЫҚ РЕАКТОРДЫҢ ІШКІ ҚОРҒАНЫСЫН ЖОҒАРЛАТУ

Горин Н.В., Щербина А.Н.

Ресей, федеральдық ядролық орталығы - Техникалық физиканың бүкіл ресейлік ҒЗИ. Челябинск облысы, Снежинск

Нейтрондардың ішкі күшті көзімен жарқ ететін бөліктердің реактормен өңдірудің физикалық ерекшеліктері бейнеленген. Жарқ ету параметрлері анықталады, ең басты реактивті жылдамдығы енгізіледі, стержендерді үлгілеуде кішігірім қателіктер мардымсыз және аппатқа ұшырау жағдайлар туған кезде қаупсіз, соның ішінде қызметшілердің қателерінен немесе құқыққа қайшылық әрекеттері физикалық процесспен қамсыздандырылған, бір жарқ етуде барлық еңгізілген апатқа ұшырау реактивтерін іске асыруын жоққа шығаратыны көрсетілген.

IMPROVING OF PULSE REACTOR INHERITE SAFETY AGAINST ERRONEOUS OR ILLEGAL ACTIONS

N.V. Gorin, A.N. Scherbina

All Russian Scientific Research Institute of Technical Physics, Snezhinsk, Russia

Physical features of fission pulse generation in the reactor in the presence of a "strong" internal neutron source are described. The authors show the pulse parameters are mainly depend on reactivity input rate. Small uncertainties in the rod calibration are insignificant. The safety under condition of an accident rise, including personnel erroneous or illegal actions, is ensured with physical processes excluding realization of the whole inserted emergence reactivity within one pulse.

УДК 539.172.3:539.2

КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕХАНИЗМА ТЕРМИЧЕСКОЙ СТАБИЛИЗАЦИИ СЛОИСТЫХ СИСТЕМ ЖЕЛЕЗО-БЕРИЛЛИЙ

[1)]Кадыржанов К.К., [1)]Туркебаев Т.Э., [2)]Русаков В.С., [2)]Плаксин Д.А., [1)]Жанкадамова А.М., [1)]Кислицин С.Б., [3)]Енсебаева М.З.

[1)]Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан
[2)]Московский государственный университет, Москва, Россия
[3)]Казахский национальный технический университет, Алматы, Казахстан

Работа посвящена разработке теоретических основ процесса термической стабилизации слоистых металлических систем. Теория основана на механизме стабилизации за счет образования переходной двухфазной области. Параметрами расчетной модели являются коэффициенты взаимной диффузии и размеры включений образованных фаз в двухфазных областях.

Использование фольг в качестве образцов при исследовании термически индуцированных процессов фазовых превращений имеет по сравнению с массивными образцами ряд преимуществ:

1. на порядки величин меньшие времена релаксации неравновесных процессов;
2. возможность комплексного использования неразрушающих методов исследования – мессбауэровской спектроскопии и рентгенофазового анализа;
3. возможность определения с помощью методов мессбауэровской спектроскопии относительного количества железосодержащих фаз на поверхности и в объеме образца.

Использование ионно-плазменных технологий является одним из перспективных направлений создания термически устойчивых модифицированных слоистых систем.

Мессбауэровские исследования кинетики фазообразования в слоистых системах на основе железа и олова при термических отжигах выполнялись при комнатной температуре двумя методами регистрации: мессбауэровской спектроскопии по конверсионным электронам (КЭМС) с обоих сторон образца в геометрии обратного рассеяния и γ-квантов в геометрии на поглощение [1]. Для обработки и анализа спектров использовался метод восстановления функций распределения сверхтонких параметров парциальных спектров. Метод реализован в компьютерной программе DISTRI, входящем в программный комплекс MSTools [2]. Определена последовательность фазовых преобразований в объеме и приповерхностных слоях образцов рассматриваемых систем при последовательных изохронных и изотермических отжигах, а также относительное содержание образующихся фаз.

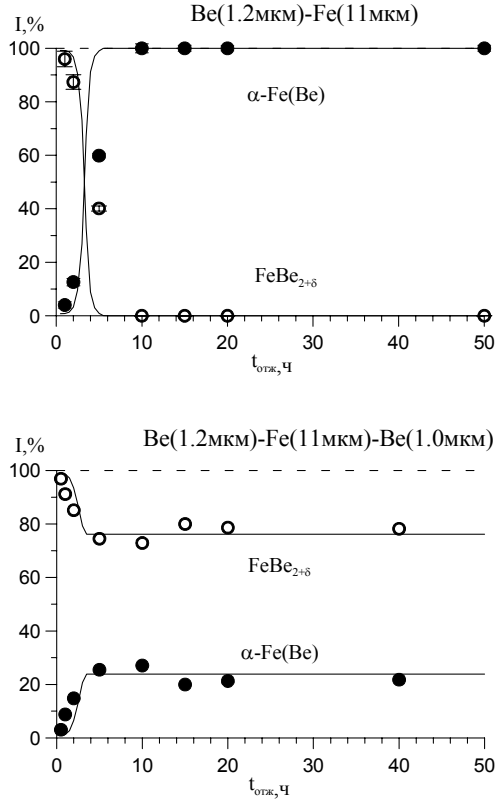
Для количественного описания полученных экспериментальных данных авторами была предложена физическая модель процессов диффузии и фазообразования в слоистой системе железо-бериллий, когда средняя концентрация бериллия не превосходила предела растворимости в железе [1]. Модель позволила количественно описать кинетику фазообразования в любой области слоистой бинарной системы при различных режимах изохронного отжига. На основе этой модели получены количественное описание процессов диффузии и фазообразования и результаты распределения фаз, образующихся по глубине образца в слоистой системе Fe-Be. Была также предпринята попытка [3] использовать предложенную физическую модель для описания процессов диффузии и фазообразования в случае превышения средней концентрации бериллия предела растворимости в железе, когда распределение фазового состояния по глубине образца не изменяется с температурой. В работе [3] сформулировано необходимое условие создания таких поверхностных слоев, а также получены термически стабильные слоистые системы Fe-Be, на поверхности которых содержится $FeBe_{2+\delta}$ (67 ат.% Be), а в объеме – насыщенный раствор бериллия в α-Fe - α-Fe(Be). При моделировании последовательных изотермических отжигов [3] рассчитывались изменения профилей концентраций состава сплава при температурах отжига 710^0C и 720^0C за времена от 0.5 до 40 часов.

На рисунке 1 представлены зависимости относительного содержания фаз для системы Fe-Be при изотермических отжигах. Видно, что в первом случае происходит полное растворение бериллида, а во втором случае получается стабильное распределение фазы $FeBe_{2+\delta}$. Поэтому возник вопрос о создании такой физической модели, которая бы описывала обе ситуации. Если в рамках обычных представлений о процессе диффузии можно описать первый случай, то описание термически стабильных слоев требует принципиально нового рассмотрения. На наш взгляд основной причиной термической стабилизации является хорошо сформированная двухфазная область между интерметаллидом и пересыщенным раствором. На основании этого предположения нами была разработана феноменологическая модель, описывающая факт термической стабилизации.

Результат термической стабилизации слоистых систем показал необходимость учета особенностей диффузионных процессов в двухфазной области.

Это связано с тем, что при формировании двухфазной области диффузия компонентов замедляется и может прекратиться совсем. В рамках обычных представлений о процессе диффузии описать формирование термически стабильных слоев не удается.

Целью данной работы является разработка физической модели и компьютерных программ для расчета распределения компонентов сплава с учетом пространственной зависимости коэффициента диффузии в двухфазной области.



$D_{FeBe}=0.2677\cdot10^{-3}$мкм²/с ($D_o=0.1\cdot10^{9}$мкм²/с , $Q_o=0.22\cdot10^{6}$Дж/моль)
$D_{BeFe}=0.2054\cdot10^{-2}$мкм²/с

○,● – результаты обработки КЭМС – экспериментов, сплошная линия - численный расчет

Рисунок 1. Относительные интенсивности парциальных КЭМС-спектров со стороны бериллиевого покрытия в зависимости от длительности изотермического отжига

Нами предлагается феноменологическая модель, способная описать ситуацию, когда прекращается диффузия компонентов. В этом случае основную роль играют процессы на границе раздела фаз. Зависимость концентраций компонентов C_i со временем определяется уравнением:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -div\vec{J}_i \qquad (1)$$

где $\vec{J}_i$ – поток i-го компонента:

$$\vec{J}_i = D_i(x)\frac{\partial C_i(x)}{\partial x}) . \qquad (2)$$

Коэффициент взаимной диффузии $D_i(x)$ в двухфазной области зависит от глубины x.

Объединяя (1) и (2) имеем:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}\left(D_i(x)\frac{\partial C_i}{\partial x}\right) . \qquad (3)$$

Перепишем это уравнение в виде:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{\partial D_i(x)}{\partial x}\frac{\partial C_i}{\partial x} + D_i(x)\frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} . \qquad (4)$$

Пусть у нас концентрация B в A не будет превышать предел растворимости C_B, вне зависимости от способа введения B в A. В этом случае система будет стремиться к минимуму свободной энергии Гиббса. Схематично это представлено стрелкой, выходящей из точки P (Рис. 2). Приближение к равновесию может быть описано классическим законом Фика. В однофазной области имеет место взаимная диффузия компонентов, температурная зависимость коэффициентов диффузии определяется законом Аррениуса.

Рассмотрим случай, когда мы находимся в двухфазной области, которая находится в равновесном состоянии. Пусть каким-либо образом мы пересыщали α-фазу атомами железа. Система будет стремиться к равновесию и диффузия будет идти по α-матрице и при встрече с включениями β-фазы будет их поглощать. Диффузия же атомов бериллия в двухфазной зоне будет происходить по β-фазе. Распределение фаз в диффузионной зоне определяется профилем концентрации в каждый момент времени, используя правило рычага на фазовой диаграмме. Для сплавов замещения (как в нашем случае) диффузия идет по вакансионному механизму, т.е. требует наличия термически равновесных вакансий, что не является необходимым при процессе поглощения и роста фаз, поэтому скорость диффузии намного меньше, чем скорость процесса фазообразования. Не принимая в расчет поверхностные эффекты (которые, кстати, не учитываются при построении равновесных фазовых диаграмм) равновесие между фазами α и β не должно нарушаться, хотя их количество изменяется со временем. Если нанести фронтально слой с пересыщенной β-фазой, то атомы из него будут диффундировать по β-матрице и поглощать включения α-фазы. При таком распределении β-фаза будет распространяться вглубь образца и ее рост будет постепенно прекращаться.

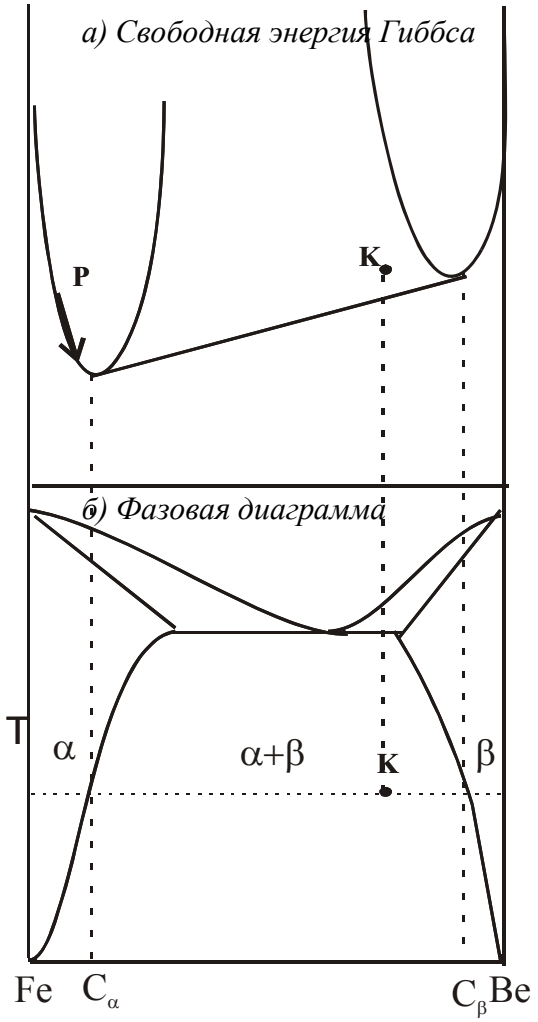


Рисунок 2. Физическая модель

Вероятность нахождения включения данной фазы в двухфазной зоне на глубине x в заданной позиции определяется выражением (правило рычага):

$$P_i = P(x) = \frac{C_\alpha - C(x)}{(C_\beta - C_\alpha)}. \qquad (5)$$

Здесь C_α и C_β соответствуют предельной концентрации α-Fe и $FeBe_2$ на диаграмме состояния Fe-Be при заданной температуре.

Вероятность образования включений точно на глубине x (до слоя i) есть:

$$\Omega_i = (P_1 \cdot P_2 \cdot \ldots \cdot P_i \cdot (1 - P_{i+1}) = \left(\prod_{j=1}^{i} P_j\right)\left(1 - P_{i+1}\right). \quad (6)$$

Вероятность образования включений глубиной больше x (со слоя i и далее):

$$W_i = \sum_{j=i}^{M} \Omega_j = \Omega_i + \Omega_{i+1} + \Omega_{i+2} + \ldots + \Omega_M . \qquad (7)$$

Площадь сечения включений на глубине x определим как:

$$S_i = S(x) = S_0 W_i \qquad (8)$$

где S_0 – площадь сечения образца.

Коэффициент диффузии на глубине x (в слое i) определяется как:

$$D_i(\tilde{o}) = D\frac{S(x)}{S_0} = DW_i, \qquad (9)$$

Поток при заданном градиенте $\partial C / \partial x$ равен:

$$J = J(x) = J_0 \frac{S(x)}{S_0} = -D\frac{\partial C}{\partial x}. \qquad (10)$$

В однофазной области коэффициент взаимной диффузии равен:

$$D_{12} = C_1 D_2 + C_2 D_1, \qquad (11)$$

где D_1 и D_2 – коэффициенты диффузии железа в бериллии и бериллия в железе, а C_1 и C_2 – атомные концентрации бериллия и железа, соответственно.

Коэффициенты диффузии D_1 и D_2 в однофазных областях определялись по закону Аррениуса:

$$D_i = D_{0i}\, e\, xp\left(-\frac{Q_{0i}}{RT}\right), \qquad (12)$$

где D_{0i} – частотный фактор, Q_{0i} – энергия активации для соответствующего компонента, R – газовая постоянная. В расчетах использовались следующие значения параметров для коэффициентов диффузии: железа в бериллии – D_{0FeBe}=1см^2/с, Q_{FeBe} = 220 кДж/моль [4]. Так как нет литературных данных, то D_{BeFe} был подгоночным параметром модели и лучшее соответствие с экспериментальными данными достигалось при значении $D_{BeFe} = 0.205 \cdot 10^{-10}$ см^2/с. На наш взгляд такой высокий коэффициент диффузии связан с диффузией по границам зерен.

Система уравнений (4) с начальными и граничными условиями решается численно с использованием стандартного пакета программ IVPAG/DIVPAG из библиотеки DIGITAL. Начальное условие выбиралось в виде ступеньки, соответствующей толщине наносимого покрытия:

$$C_1 = \begin{cases} 1 & \text{ï ðè } 0 < \tilde{o} < d_0 \\ 0 & \text{ï ðè } d_0 < \tilde{o} < d \end{cases},$$

где d – толщина образца, d_0 – толщина слоя бериллия. Граничным условиям соответствует отсутствие потоков на границе образца: $\left.\frac{\partial C}{\partial x}\right|_{x=0;d} = 0$.

Основными параметрами расчетной модели являются коэффициенты взаимной диффузии. Дополнительным параметром является размер включений λ образованных фаз в двухфазных областях. Вариации размеров включений λ фаз в разумных пределах не существенно влияет на кинетику фазообразования (Рис. 3).

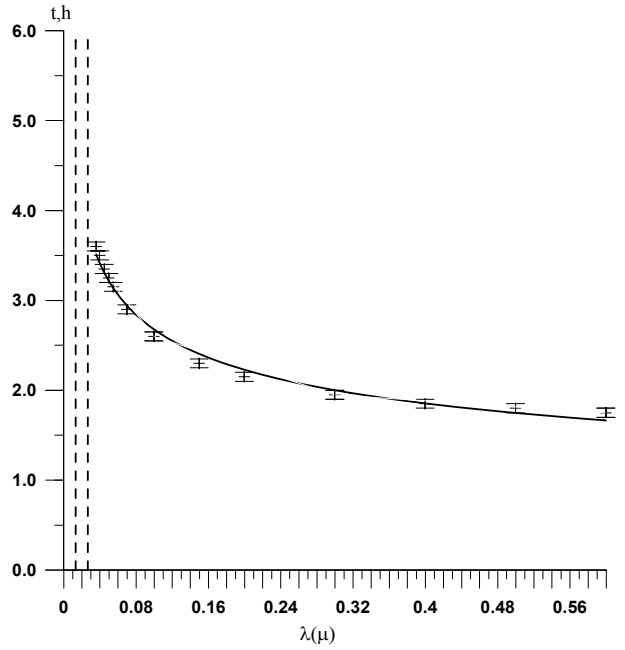


Рисунок 3. Зависимость времени выхода системы на стабилизацию от размера включений λ

На рисунке 4 показано время выхода на стабилизацию от коэффициентов диффузии. Как видно, с уменьшением значений коэффициентов диффузии это время возрастает. Из этого следует, что подгоночный характер D_{BeFe} не влияет на факт термической стабилизации.

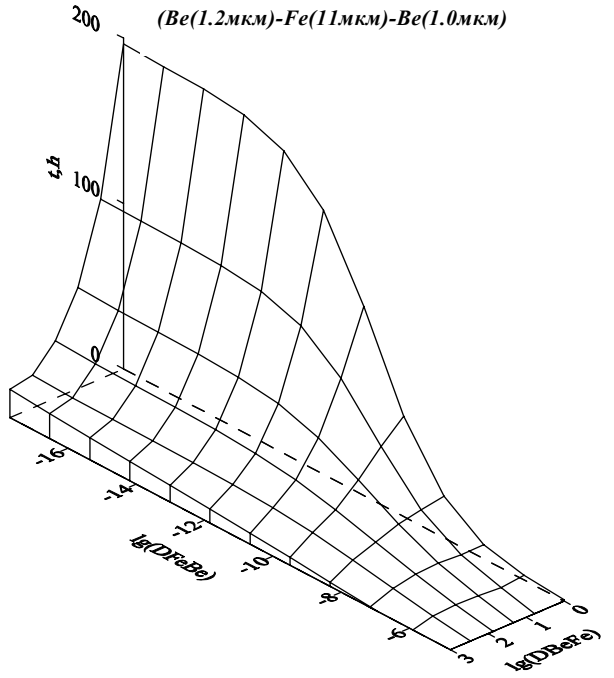
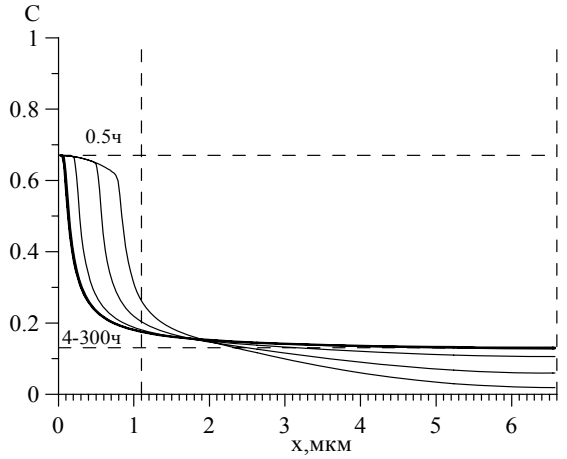


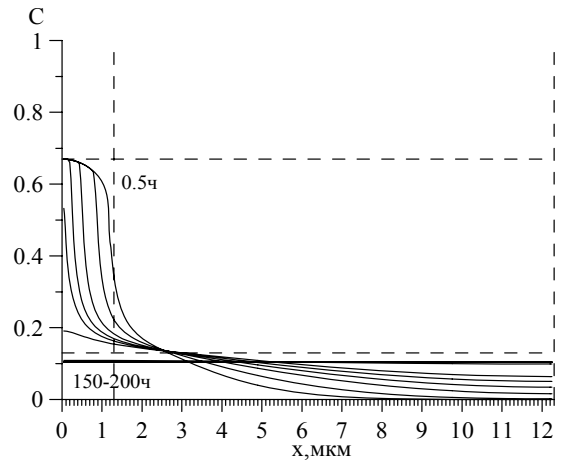
Рисунок 4. Зависимость времени выхода на стабилизацию от коэффициентов диффузии (мкм^2/s) бериллия в железе (DBeFe) и железа в бериллии (DFeBe)

Компьютерная программа позволяет рассчитать профиль концентрации бериллия при данной температуре. По заданному концентрационному профилю в каждый момент времени определялись координаты x_1 и x_2, соответствующие интервалу 0.13÷0.67 существования двухфазной области $FeBe_2$+α-Fe(Be) на диаграмме состояния Be-Fe при температуре 720°C. Коэффициент диффузии в двухфазной области рассчитывался заново на каждом шаге для новых значений x_1 и x_2. На рисунке 5а,б приведены результаты компьютерного расчета концентрационных профилей. За время t=4ч первая система стабилизировалась (Рис. 5а), за время t=150ч произошло полное растворения бериллида (Рис. 5б).

На рисунке 6 (а,б) показаны коэффициенты диффузии, соответствующие рисунку 5(а.б). При стабилизации коэффициент диффузии становится равным нулю, а при растворении выходит на некоторое постоянное значение. Это объясняется более толстым суммарным слоем бериллия (2,12мкм), превосходящем предел насыщения Be в α-Fe при равномерном легировании.

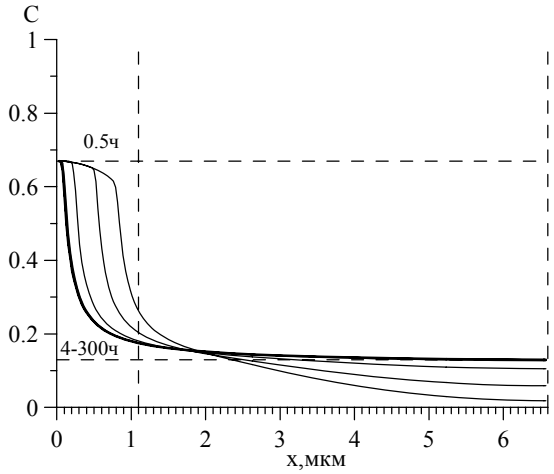


а) Термическая стабилизация (Be(1.2мкм)-Fe(11мкм)-(1.0мкм))

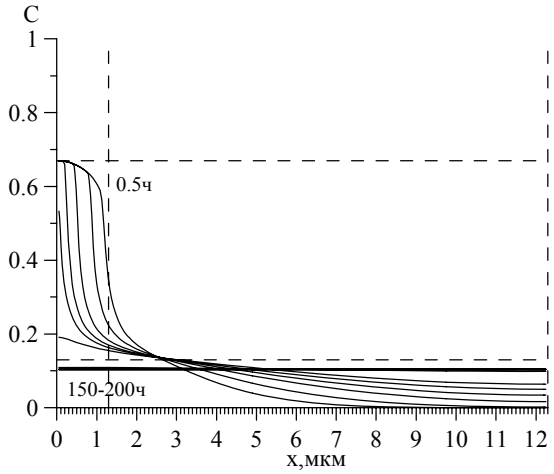


б) Растворение (Be(1.2мкм)-Fe(11мкм))

Рисунок 5. Профили концентрации бериллия в разные моменты времени



а) Термическая стабилизация (Be(1.2мкм)-Fe(11мкм)-(1.0мкм))



б) Растворение (Be(1.2мкм)-Fe(11мкм))

Рисунок 6. Зависимость коэффициента диффузии от глубины образца в различные моменты времени

Для сравнения с КЭМС результатами необходимо ввести в модель функцию выхода электронов конверсии. Она определялась по формуле [3]:

$$F(x) = \exp\left(-\frac{\int_0^x C_1(x)dx}{d_1}\right)\cdot\exp\left(-\frac{\int_0^x C_2(x)dx}{d_2}\right), \quad (12)$$

где d_1(E) = 0.04 мкм, d_2(E) = 1 мкм – эффективные глубины регистрации электронов конверсии для однородных слоев железа и бериллия при резонансном поглощении γ-квантов с энергией E.

Численные и экспериментальные зависимости относительных интенсивностей I парциальных КЭМС-спектров со стороны бериллиевого покрытия и со стороны железа показаны на рисунке 6а,б**.** Видно, что данная физическая модель хорошо описывает экспериментальные результаты. На рисунке 6а показан случай полного растворения бериллида. Из рисунка 6б видно, что за время 3,5-4 часа устанавливается термодинамически равновесное состояние системы, это означает что в объеме образца нет преобладающей фазы. Данное состояние сохраняется в течение 40 часов и можно утверждать о том, что система (фазы $FeBe_2$) находится в состоянии термической стабилизации.

Модель позволяет определить толщину образуемого стабильного слоя по предельным концентрациям на фазовой диаграмме. Для этого найдем толщину покрытия d_{Be}. Объем, приходящийся на один атом:

$$\Omega_1 = \frac{A_1}{\rho_1}\frac{1}{N_0} \text{ - для сорта 1,} \quad (14)$$

$$\Omega_2 = \frac{A_2}{\rho_2}\frac{1}{N_0} \text{ - для сорта 2,} \quad (15)$$

где молярные массы: $A_1 = A_{Be} = 9{,}01$г/моль, $A_2 = A_{Fe} = 55{,}85$г/моль; плотности: $\rho_1 = \rho_{Be} = 1{,}85$г/см^3, $\rho_2 = \rho_{Fe} = 7{,}87$г/см^3. Используем закон Вегграда:

$$\Omega = \Omega_1 C_1 + \Omega_2 C_2;\ \ C_2 = 1 - C_1, \quad (16)$$

если C_1=0, то $\Omega=\Omega_2$ – присутствует только атом сорта 2; если C_1=1, то $\Omega=\Omega_1$ – присутствует только атом сорта 1. Общее число атомов в слое *dx*:

$$N_1 + N_2 = \frac{Sdx}{\Omega} = \frac{Sdx}{(\Omega_1 - \Omega_2)C_1 + \Omega_2} \quad (17)$$

После преобразований получим формулу для вычисления толщины покрытия d_{Be} по предельным концентрациям $\tilde{N}_\beta$, $\tilde{N}_\alpha$:

$$d_{Be} = \frac{\dfrac{1}{\dfrac{A_1}{A_2}\dfrac{\rho_2}{\rho_1}\left(C_\beta - C_\alpha\right)}\cdot\left[1+\left(\dfrac{A_1}{A_2}\dfrac{\rho_2}{\rho_1}-1\right)C_\beta\right]\cdot\dfrac{A_1}{A_2}\dfrac{\rho_2}{\rho_1}C_\alpha d_{Fe}}{\dfrac{1}{\dfrac{A_1}{A_2}\dfrac{\rho_2}{\rho_1}\left(C_\beta - C_\alpha\right)}\left[1+\left(\dfrac{A_1}{A_2}\dfrac{\rho_2}{\rho_1}-1\right)C_\beta\right]\cdot\dfrac{A_1}{A_2}\dfrac{\rho_2}{\rho_1}C_\alpha d_{Fe}\cdot\left(1-C_\alpha\right)-1} \quad (18)$$

Профили концентрации для разных толщин бериллиевого покрытия d_{Be}, вычисленного по формуле (18), показаны на рисунке 7.

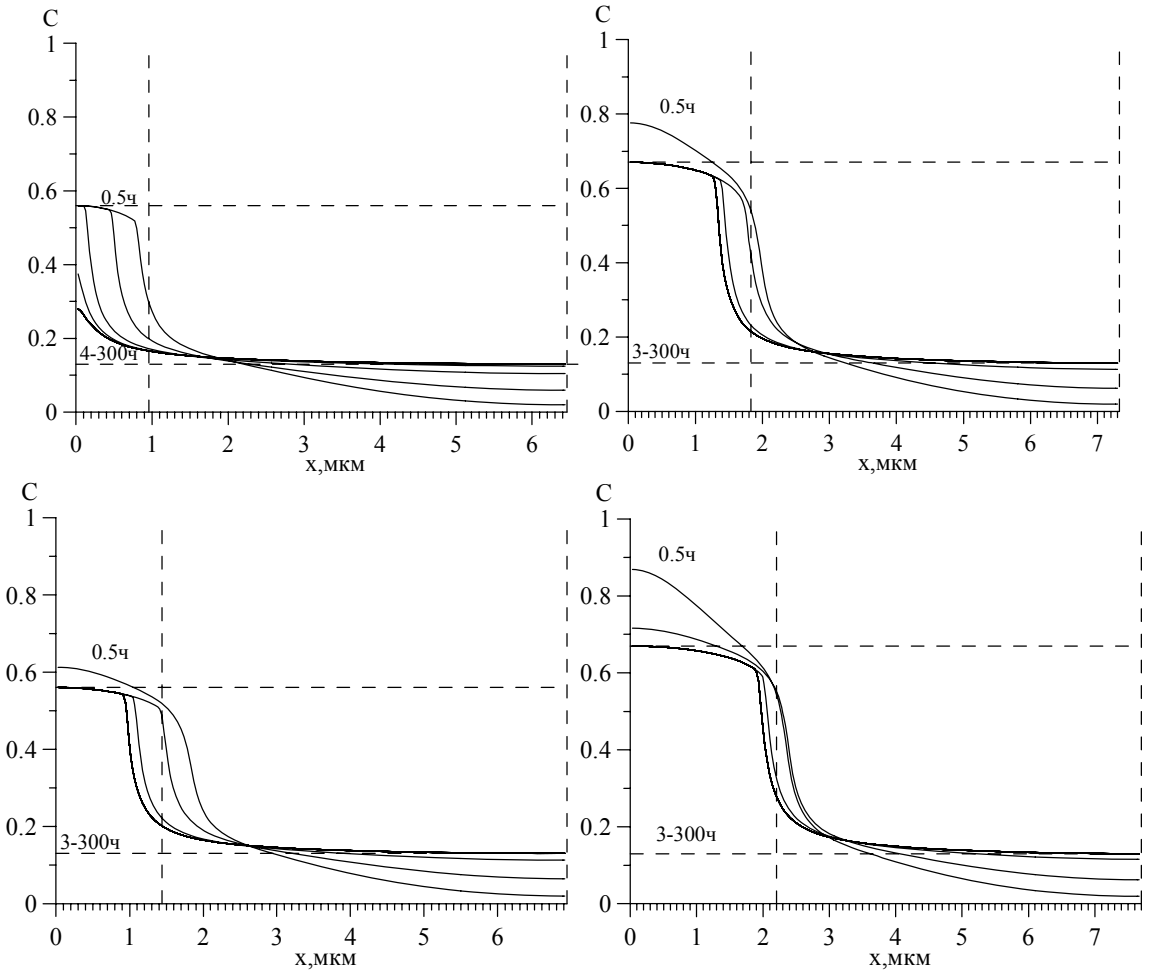


Рисунок 7. Профили концентрации для разных толщин напыленного слоя бериллия

В данной работе разработана физическая модель, позволяющая объяснить факт термической стабилизации интерметаллидных соединений на поверхности модифицированных ионным осаждением металлических образцов. Создана компьютерная программа для расчета распределения компонентов сплава с учетом пространственной зависимости коэффициента диффузии в двухфазной области. На основании полученных результатов можно сделать следующие выводы:

1. Разработана физическая модель, позволяющая описать кинетические процессы в слоистых системах и образование распределенных по глубине термически стабильных фаз.
2. Экспериментально обнаруженный механизм термической стабилизации связан с образованием двухфазного слоя, служащего барьером для диффузии компонентов.
3. На основании разработанной модели созданы компьютерные программы и проведены расчеты, результаты которых хорошо согласуются с полученными экспериментальными данными.
4. Используемый программный продукт позволяет определять начальную конфигурацию слоистой системы для создания высокотемпературных многофункциональных материалов нового поколения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Kadyrzhanov, K.K., Rusakov, V.S., Turkebaev T.E., Kerimov E.A., Lopuga A.D. Diffusion and phase formation in thin two-layer Fe-Be films after subsequent isochronous annealing. //Nucl.Instr.Meth.Phys.Res.B - 2001.- V.174.- P.463-474.
2. Кадыржанов К.К., Туркебаев Т.Э., Удовский А.Л. Физические основы ионных технологий создания стабильных многослойных металлических материалов / Алма-Ата, 1992 – 195С.
3. Kadyrzhanov, K.K., Kerimov E.A., Rusakov V.S., Turkebaev T.E., Udovsky A.L. The thermal stability of metal multilayer systems.// I Eurasia conference on nuclear science and its application: Abstract. - Izmir, Turkey, 2000.-V.2. - P.760-772.
4. Григорьев Г.В., Павлинов Л.В. Диффузия бериллия в железе и в никеле // ФММ. - 1968.- Т.25.- С.836-839.

ТЕМІР-БЕРИЛЛИЙ ҚАБАТТЫ ЖҮЙЕНІҢ ТЕРМИЯЛЫҚ ТҰРЛАУЛЫ ТЕТІГІН КОМПЬЮТЕРЛІК ҮЛГІЛЕУ

[1)]Қадыржанов К.К., [1)]Туркебаев Т.Э., [2)]Русаков В.С.,
[2)]Плаксин Д.А., [1)]Жанқадамова А.М., [1)]Кислицин С.Б., [3)]Енсебаева М.З.

[1)]ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан Республикасы
[2)]Москваның мемлекеттік университеті, Москва, Ресей
[3)]Қазақ Ұлттық техникалық университеті, Алматы, Қазақстан Республикасы

Бұл еңбек қабатты металл жүйелерінің термиялық тұрлаулық процесінің теориялық негіздерін әзірлеуге арналған. Теория екі фазалы саманың пайда болу есебін тұрлаулылық тетігіне негізделген. Өзара коэффициенттері және екі фазалы салаларда түзілген фазалардың мөдшері есептеме моделінің параметрлері болегі табылады.

KOMPUTER SIMULATION OF THERMAL STABILITY MECHANISM OF Fe-Be LAYER SYSTEMS

[1)]K.K. Kadyrzhanov, [1)]T.E. Turkebayev, [2)]V.S. Rusakov ,
[2)]D.A. Plaksin, [1)]A.M. Zhankadamova, [1)]S.B. Kislitsin, [3)]M.Z. Ensebaeva

[1)]Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan
[2)]Moscow State University, Moscow, Russia
[3)]Kazakh national technical University, Almaty, Kazakhstan

The work is devoted to development of theoretical bases of process of thermal stabilization of layered metal systems. Parameters of calculated model are the factors of mutual diffusion and sizes of inclusions of the formed phases in biphase areas.

УДК 621.039.193: 669.018

ИССЛЕДОВАНИЕ КОРРОЗИОННОЙ ПОВРЕЖДАЕМОСТИ АЛЮМИНИЕВОГО СПЛАВА САВ-1, ОБЛУЧЕННОГО НЕЙТРОНАМИ

Максимкин О.П., Яровчук А.В., Доронина Т.А., Турубарова Л.Г.

Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Приводятся результаты экспериментальных исследований коррозионной стойкости стержня автоматического регулирования (АР), изготовленного из низколегированного алюминиевого сплава САВ-1, после длительного срока эксплуатации в атомном реакторе ВВР-К и хранения в водном бассейне. Коррозионные испытания осуществляли с использованием электрохимических и химических методов оценки стационарного необратимого потенциала, анодной поляризации и скорости коррозии на образцах, вырезанных из верхнего и нижнего конца стержня АР, характеризующихся различной степенью облучения. Установлены особенности возникновения и развития питтинговой коррозии алюминиевого сплава САВ-1 облученного различным флюенсом нейтронов. Показано, что нейтронное воздействие изменяет термодинамическую стойкость сплава и повышает склонность к коррозионному поражению.

Введение

В настоящее время чрезвычайно остро стоит проблема безопасного хранения выработавших свой проектный срок деталей и узлов действующих ядерных реакторов. При этом прогноз длительности хранения конструкций осуществляют на основе оценки коррозионной стойкости материалов, используемых в изделиях. Как известно [1], основным конструкционным материалом исследовательского реактора ВВР-К (Алматы, ИЯФ НЯЦ РК), является низколегированный алюминиевый сплав САВ-1, из которого изготовлены корпус, сепаратор, а также другие компоненты активной зоны. Этот сплав широко используется благодаря его высокой пластичности, теплопроводности, а также относительно низком сечении захвата нейтронов и удовлетворительной коррозионной стойкости в водной среде. Вместе с тем выполненный недавно внешний осмотр стержней автоматического регулирования из САВ-1, которые эксплуатировались в реакторе в течение 25 лет, показал, что, несмотря на жестко регламентированные режимы работы и хранения изделий, на поверхности некоторых из них обнаружены дефекты, вызванные коррозией. Учитывая то обстоятельство, что сплав САВ-1 используется в качестве оболочечного в тепловыделяющих сборках ВВР-К, оценка коррозионной стойкости алюминиевого сплава после нейтронного облучения относится к числу необходимых этапов дальнейшего безопасного хранения отработавших деталей и узлов реактора.

В настоящей работе приводятся результаты экспериментальных исследований коррозионной стойкости алюминиевого низколегированного сплава САВ-1 после эксплуатации в водно-водяном атомном реакторе ВВР-К в качестве стержня автоматического регулирования.

Методика экспериментов

Сплав САВ-1 состава (вес%): Mg 0.44-0.9; Si 0.6-1.2; Fe 0.2; Ni 0.03; Zn 0.03; Cu 0.01; Mn 0.01; Ti 0.01; остальное – Al изучали в необлученном и облученном состояниях. Облученные образцы вырезали из верхнего и нижнего концов стержня автоматического регулирования после эксплуатации в активной зоне реактора ВВР-К. Расчеты показали, что флюенс нейтронного облучения нижнего конца стержня составил $1{,}3\cdot10^{26}$н/м^2, верхнего – на несколько порядков ниже. Для получения сравнительных данных в качестве исходного материала использовали образцы необлученного сплава в состоянии поставки. Изучение коррозионной стойкости материала проводили электрохимическим методом оценки стационарного электродного потенциала и анодной поляризации в растворе $0{,}1NFeCl_3$ при комнатной температуре. Для этой цели была собрана установка, включающая потенциостат, вольтметр, миллиамперметр (марки Ф30), электролитическую ячейку, вспомогательный платиновый и каломельный электрод сравнения. Образцы перед испытанием шлифовали, полировали, измеряли размеры рабочей поверхности, нерабочую поверхность покрывали изолирующим слоем. После обезжиривания образец помещали в одно из колен электролитической ячейки и при комнатной температуре проводили электрохимические измерения. Электродный стационарный потенциал металла измеряли с помощью вольтметра, полученные значения пересчитывали по отношению к водородному потенциалу по формуле:

$$E_{изм} = E_{хс} + E,$$

где E – потенциал металла по отношении к водородному электроду, В; $E_{хс}$ – потенциал хлорсеребряного электрода при температуре испытания, В; $E_{изм}$ – измеряемый потенциал металла по отношению к хлорсеребряному электроду, В.

После чего методом анодной поляризации при действии постоянного тока изучали способность сплава к пассивации в хлорсодержащем растворе ($0{,}1NFeCl_3$). Потенциал задавали через 0,1 В со скоростью изменения 2 В\час.

Параллельно исследование скорости коррозии облученных и необлученных образцов осуществляли химическим методом в ускоренном режиме испытаний при 20^0C в водном растворе $0{,}5NFeCl_3$ [2]. Критерием скорости коррозии служил показатель изменения потерь веса к площади поверхности испытуемого образца за определенные промежутки времени. Взвешивание образцов выполняли на аналитических весах марки KERN-770 с точностью измерения 0,0001г. Проводили также визуальный осмотр и исследование микроструктуры поверхности сплава до и после испытаний с помощью оптического микроскопа Neophot-2.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Оценка электродного стационарного потенциала алюминиевого сплава САВ-1 в исходном состоянии показала, что при комнатной температуре необлученный материал обладал положительным значением потенциала (+ 0,19В) . После облучения сплава на поверхности устанавливался потенциал с отрицательной величиной, причем, образцы, вырезанные из нижнего конца стержня АР, имели меньший показатель (- 0,686 В), чем образцы, вырезанные из верхнего конца стержня (–0,254 В). Согласно основным положениям термодинамики [3,4], отрицательные величины стационарного необратимого потенциала характерны для материалов с низкой термодинамической стабильностью и соответственно невысокой коррозионной стойкостью в испытываемом растворе. Полученные результаты показали, что в состоянии поставки САВ-1 обладал максимальной термодинамической стабильностью и способен проявлять высокую стойкость к коррозии во всех средах, за исключением содержащих окислитель [4]. Облученные образцы, вырезанные из верхнего конца стержня АР, оказались недостаточно термодинамически стабильными, и поэтому склонны к коррозионному поражению не только в кислых, но и в нейтральных средах, содержащих кислород. Образцы, изготовленные из нижнего конца регулирующего стержня и получившие максимальную дозу облучения, подпадали под классификацию материала с самой низкой термодинамической стабильностью, способного корродировать даже в нейтральных бескислородных средах [4].

Металлографическое изучение поверхности образцов сплава САВ-1 после различного времени пребывания в агрессивном растворе хлорного железа показало, что коррозия носила питтинговый характер На рисунке 1 приведена фотография поверхности облученного образца САВ-1 после пребывания в растворе $0{,}5NFeCl_3$ в течение 7 часов. Видно, что поверхность образца поражена питтинговыми образованиями, размеры которых в отдельных случаях достигали 250-300 мкм. После 16 часов нахождения облученного образца в агрессивном растворе величина отдельных питтингов достигала 1000 мкм. При детальном рассмотрении крупных питтингов удалось установить, что пораженные участки имели неровные очертания. Это свидетельствовало о возможном процессе слияния многочисленных мелких питтингов в более крупные дефекты при длительном воздействии агрессивного раствора. Наиболее сильно пораженными коррозией оказались края образцов.

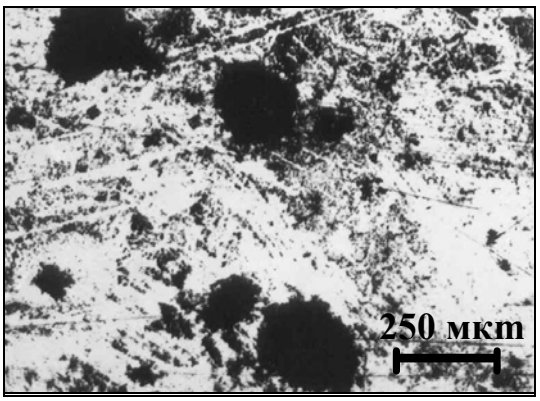


Рисунок 1. Питтинговые образования на поверхности образца САВ-1

Исследование анодной поляризации сплава САВ-1 в растворе $0{,}1NFeCl_3$ позволило установить кинетику коррозионных процессов и условия перехода материала в пассивное состояние. На рисунке 2 приведены анодные поляризационные кривые, представляющие собой зависимость изменения плотности поляризующего тока от задаваемого потенциала для сплава САВ-1 в исходном состоянии и после облучения. Видно, что для необлученных образцов поляризационная кривая имела два участка стабильного значения плотности тока, и образцы слабо растворялись вплоть до напряжения ~ 0.653В (Рис. 2, кривая 1). Дальнейшее повышение напряжения от 0.653 до 0.953 В сопровождалось слабым развитием коррозии. В интервале напряжений 0.953 ÷1.653 В скорость анодного процесса уменьшилась, и материал перешел в пассивное состояние. Стабильность значений плотности тока при изменении потенциала свидетельствует об отсутствии растворения металла и пассивации поверхности.

Начиная с потенциала 1.653 В отмечался ускоренный рост анодного тока и наблюдалась перепассивация сплава САВ-1, характерная для перехода металла в активное состояние. Рост плотности тока при напряжении выше 2.053 В связан, как показали взвешивание и металлография, с растворением металла и появлением на его поверхности многочисленных язв. Напряжение, при котором произошло нарушение пассивного состояния образца, вслед за которым отмечалось резкое и интенсивное увеличение плотности тока, относится к критической точке потенциала питтингообразования. Для необлученного материала САВ-1 величина перенапряжения и питтингообразования составила 1.653 В.

Для сильнооблученных образцов, вырезанных из нижнего конца стержня АР, активность анодных процессов проявлялась уже в интервале напряжений 0.153 ÷ 0.353 В (Рис. 2, кривая 3). При значениях от 0.353 до 1.353 В скорость коррозии несколько снижалась, но дальнейшее повышение напряжения способствовало активизации анодного процесса. Критическое значение потенциала питтингообразования для сильнооблученных образцов оказалось на 0.7 В меньше, чем для необлученных.

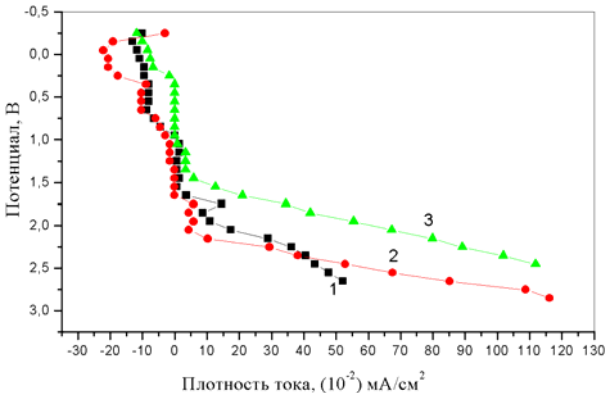


Рисунок 2. Анодные поляризационные кривые сплава САВ-1 в состояниях: 1-необлученном, 2-слабооблученном, 3-сильнооблученном ($1{,}3 \cdot 10^{26}$ н/м^2)

Образцы сплава САВ-1, изготовленные из верхнего конца регулирующего стержня, оказались более устойчивыми к коррозии по сравнению с сильнооблученным материалом. На начальном отрезке анодной поляризационной кривой отмечено уменьшение тока поляризации с ростом напряжения, что является признаком проявления транспассивного состояния материала (Рис. 2, кривая 2). Это явление обычно характерно для материалов, на поверхности которых при погружении их в агрессивный раствор происходит образование пассивирующей пленки, защищающей материал от коррозионного поражения [5]. Вслед за стадией транспассивации на кривой виден участок сравнительно стабильного значения плотности тока от напряжения. Однако после значения 0.353 В анодный процесс вновь активизировался. В целом поляризационная кривая слабооблученного материала содержит несколько участков, на которых плотность тока практически не зависела от задаваемого потенциала, что свойственно для пассивного состояния сплава: 0.053 ÷ 0.153 В; 1.053 ÷ 1.253 В; 1.353 ÷ 1.653 В. Перепассивация и активное питтингообразование слабооблученного алюминиевого сплава отмечалась при потенциале 1.653 В, что на 0.3 В больше, чем для сильнооблученного материала. Таким образом, эти данные свидетельствуют о том, что слабооблученный сплав САВ-1 более склонен к пассивации в хлорсодержащем растворе, чем после облучения высокими дозами нейтронного потока. Следует отметить, что напряжение точки перепассивации совпадает со значением, полученным для необлученного материала.

Эти результаты подтвердились ускоренными испытаниями химической коррозии алюминиевого сплава в хлорсодержащей агрессивной среде повышенной концентрации 0.5N$FeCl_3$. На рисунке 3 приведены данные по изменению потерь веса образцов сплава от времени воздействия раствора с единицы площади поверхности образцов в необлученном состоянии (кривая 1) и после облучения нейтронами различного флюенса (кривые 2 и 3). Видно, что наибольшим сопротивлением коррозии, как установлено выше, обладал необлученный материал. Скорость коррозии необлученных образцов почти в 2,2 раза ниже, чем облученных. Из графика (Рис. 3) видно, что доза нейтронного облучения изменяет сопротивление коррозии материала. Кривая удельного показателя скорости коррозии для сильнооблученных образцов расположена выше, чем для слабооблученных, что свидетельствует об ускорении коррозии с повышением нейтронного флюенса. На начальном этапе воздействия агрессивной среды достаточно большим сопротивлением коррозии обладал и слабооблученный материал (Рис. 3 кривая 2), что согласуется с ходом анодных поляризационных кривых (Рис. 2, кривые 1 и 2) и со значением напряжения перепассивации. Различие в скорости коррозии слабооблученного материала и необлученного отмечается при выдержке в агрессивном растворе более 12 часов.

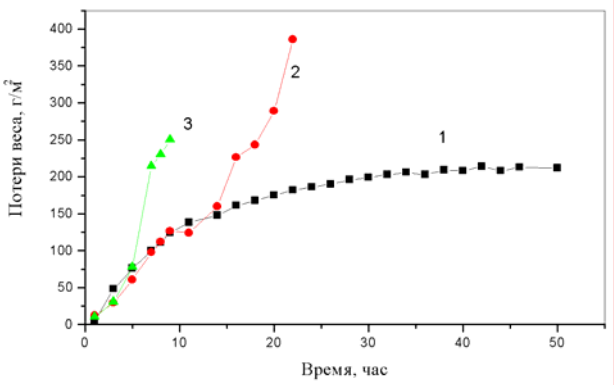


Рисунок 3. Зависимость скорости коррозии САВ-1 от состояния: 1- необлученное; 2- слабооблученное; 3- сильнооблученное ($1{,}3 \cdot 10^{26}$ н/м^2)

Очевидно, что после высоких доз облучения нейтронами материал становится более термодинамически неустойчивым, по сравнению с необлученным и слабооблученным, что является причиной максимальной склонности к питтингообразованию. Полученные результаты хорошо согласуются с известным положением о влиянии энергетического состояния материала на его коррозионную стойкость [4]. Известно, что наличие микро- и макродефектов, вакансий, дислокаций способствует нарушению пассивности поверхности металла в средах, содержащих хлор-ионы и являются центрами зарождения питтингов [4,5].

Таким образом, изучение влияния облучения на коррозионную стойкость низколегированного сплава САВ-1 показало, что в хлорсодержащей среде алюминиевый сплав корродирует сильнее, чем необлученный. При этом скорость питтинговой коррозии существенно повышается при увеличении дозы нейтронного облучения. Вероятно, решающую роль в изменении скорости питтингообразования в сплаве САВ-1 играет термодинамическая стабильность и изменение структуры материала, однако чтобы убедиться в этом, необходимы дополнительные исследования.

Заключение

Установлены особенности развития питтинговой коррозии в хлорсодержащих средах низколегированного алюминиевого сплава САВ-1 после нейтронного облучения. Найденные значения электродного стационарного потенциала сплава в исходном состоянии и после облучения показали, что наибольшей термодинамической стабильностью и максимальной коррозионной стойкостью обладает материал в исходном состоянии. Облучение снижает термодинамическую стабильность материала и усиливает склонность к поражению точечной коррозией. Электрохимическими методами исследования показано, что облучение сокращает периоды пассивации материала и ускоряет скорость коррозии низколегированного алюминиевого сплава САВ-1. Для оценки коррозионной стойкости сплава необходимо расширение дальности исследований в этом направлении.

Литература

1. А.С. Займовский, В.В. Калашников, И.С.Головин. Тепловыделяющие элементы атомных реакторов.// М.: Атомиздат, 1966, 24с.
2. Коррозия. Справ. Изд. Под ред. Л.Л. Шрайдера. // Пер. с англ../. М.:Металлургия, 1981.- 632с.
3. В.С. Синявский, В.Д. Вальков, Г.М. Будов. Коррозия и защита алюминиевых сплавов.// М..,Металлургия, 1979, 224 с.
4. Н.Д. Томашов. Теория коррозии и защиты металлов.// М.: Изд. АНСССР, 1959, С. 543-551.
5. В.В. Герасимов, А.И. Громова, Е.С. Головина, Г.С. Москвичев и др. Коррозия и облучение.//М.: Госатомиздат.-1963. С.89-123.

НЕЙТРОНДАРМЕН СӘУЛЕЛЕНДІРГЕН САВ-1 АЛЮМИНИЙ ҚОРЫТПАСЫНЫҢ ТОТЫҒУҒА ҚАРСЫЛЫҒЫНЫҢ БАҒАСЫ

Максимкин О.П., Яровчук А.В., Доронина Т.А., Турубарова Л.Г.

ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан Республикасы

ВВР –К атомдық реакторында ұзақ уақыт қолданылған және сулы бассейнде сақталған төмен қоспалы САВ-1 алюминий қортпасынан жасалған автоматты реттеуші түтігінің тотығуға қарсылығының тәжірибелік зерттеулер нәтижелері келтірілген. Автоматты реттеуші түтігінің жоғары және төменгі бөліктерінен кесіліп алынған бөлшектерінің тотығу сынақтары химиялық және электрохимиялық әдістерімен тұрақты потенциялы мен тотығу жылдамдығын хлорлы ортада үдеу тәртібінде бағалау өткізілді. Әр түрлі флюенспен сәулелендірілген САВ-1 алюминий қортпасының питтингті тотығуының пайда болуы мен дамуының ерекшеліктері анықталды. Сәулелендіру төмен қоспалы САВ-1 алюминий қортпасының пассивация периодын қысқартатындығы және тотығудың жылдандығын үдететіндігі көрсетілді.

THE RESEARCH OF CORROSION DEFECTES IN ALUMINIUM ALLOY SAV-1, IRRADIATED BY NEUTRONS

O.P Maksimkin, A.V. Yarovchuk, T.A. Doronina, L.G. Turubarova

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

The study of corrosion resistance of rod from low aluminium alloy SAV-1 after a long term operating in the nuclear reactor VVR-K and in water pool storage are resulted. The corrosion tests executed with usage of chemical and electrochemical methods of an estimation of a fixed potential and corrosion rate in chlorine solution to the environment on an accelerated mode on samples cut from the top and bottom end of a rod an ARE. With application of methods of a volume determination by hydrostatic weighting of corrosion of aluminium alloy SAV-1 irradiated by a different fluency of neutrons. Is showing, that the irradiation decrease periods of passivation and accelerates a rate corrosion of aluminium alloy SAV-1.

УДК 539.376:621

КОРРЕЛЯЦИЯ МЕХАНИЧЕСКИХ СВОЙСТВ НЕРЖАВЕЮЩЕЙ СТАЛИ ПОД ОБЛУЧЕНИЕМ

Ганеев Г.З., Туркебаев Т.Э., Карпиков А.Н.

Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Изменения предела пластичности и прочности стали 08Х16Н11М3, облученной в реакторе БН-350, анализируются с помощью уравнений, полученных на основе данных по стали AISI 316. Также анализируется изменение однородной деформации.

Прочностные свойства стали 08Х16Н11М3 облученные в быстром реакторе БН-350 анализируется с помощью уравнений описывающих предел пластичности и прочности в зависимости от дозы повреждения, температуры и содержания гелия. Так же анализируется однородное удлинение образца. в зависимости от прочностных свойств.

Целью настоящего анализа является построение корреляционных кривых описывающих механические свойства образцов при растяжении в зависимости от условий облучения по экспериментальным точкам, приведенным в работе [1], с целью предсказания поведения конструкционной стали в иных режимах облучения.

Предполагаются две возможности анализа изменения механических свойств исследуемой стали под облучением. Построение корреляционных кривых в зависимости от условий облучения [2]; зависимость механических свойств от развития микроструктуры облучаемого материала [3]. В данной работе дан анализ на основе первого варианта. В работе [2] приведены корелляционные кривые зависимости механических свойств стали, сходных по составу с исследуемой, в зависимости от температуры, степени повреждения, концентрации гелия. Параметры эмпирической формулы, отражающие в некоторой степени физические закономерности, получены на основании нескольких сот экспериментальных точек.

Корелляционные кривые и экспериментальные значения предела пластичности σ_y и прочности σ_u приведены на рисунке 1. Различие между экспериментальными значениями и корелляционными кривыми объясняется тем, что механические свойства определялись при комнатной температуре, а не при температуре работы реактора (300° С), как это обычно делается в такого рода анализе. Отметим, что в расчете полагалась следующая атомная концентрация He: $C_{He} = 0{,}3 \cdot 10^{-6}$ сна.

На рисунке 2. дана зависимость однородной деформации δ в зависимость от изменения величины $(1-\sigma_y/\sigma_u)$ в процессе облучения. Такая функциональная зависимость оказывается достаточно гладкой и монотонной и является общепринятой. Видно, что с ростом аргумента однородная деформация растет. Очевидно, что крайняя точка соответствующей деформации без облучения не корректна.

Изменения механических свойств стали в зависимости от дозы приведена в таблице 1.

Таблица 1. Изменение механических свойств материала под облучением[*)]

СНА	0	0,25	1,27	7,1	10,8	11,9	15,6
σ_y, МПа	512	550	672	815	980	1010	910
σ_u, МПа	690	786	866	960	1120	1140	1190
δ, %	17	1,8	1,6	1,5	1,48	1,27	2,8

*) $T_{обл}$=573К, $T_{исп}$=300К.

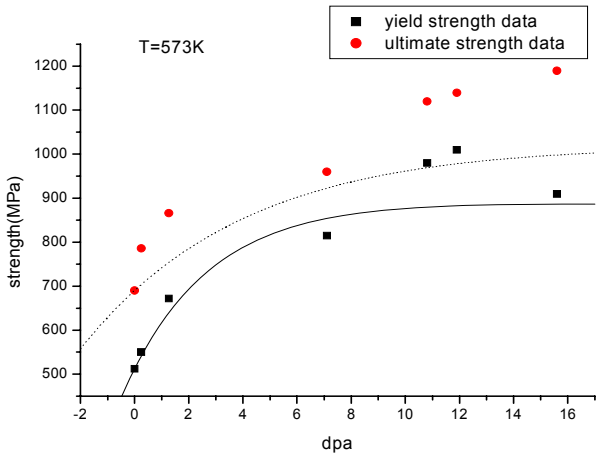


Рисунок 1. Зависимость предела пластичности и прочности от облучения. Сплошная кривая соответсвует пределу пластичности; пунктирная – пределу прочности

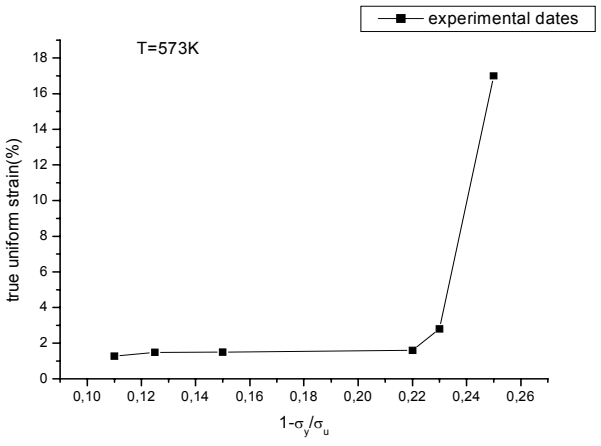


Рисунок 2. Зависимость однородной деформации от отношения предела пластичности к пределу прочности

Как видно, корреляционные кривые с параметрами приведенными в работе [2] для стали AISI 316 удовлетворительно описывают изменения механических свойств стали 08Х16Н11М3 и могут быть использованы для предсказания механических свойств этой стали при облучении в реакторе БН-350.

Литература

1. Кадыржанов К.К., Романенко О.Г., Туркебаев Т.Э., Максимкин О.П., Кислицин С.Б., Чумаков Е.В. Структура и механические свойства нержавеющей стали 08Х16Н11М3, облученной в быстром реакторе БН-350 //V международная конференция «Взаимодействие излучений с твердым телом», Минск, 6-9 октября, 2003г., С.157-159.
2. Simons R.L. Tensile property correlation for 20% cw 316 stainless steel //J. Nuclear Materials. V. 103 & 104, 1981, pp.815-820
3. Garner F.F., Hamilton M.L., Panayotou N.F., Johnson G.D. The microstructural origins of yield strength changes in AISI 316 during fission or fusion irradiation //J. Nuclear Materials. V. 103 & 104, 1981, pp.803-808.

СӘУЛЕЛЕНДІРУ КЕЗІНДЕГІ БОЛАТЫН МЕХАНИКАЛЫҚ ҚФСИЕТТЕРІНІҢ ӨЗАРА БАУЛАНЫСЫ

Ганеев Г.З., Туркебаев Т.Э., Карпиков А.Н.

ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан Республикасы

БН-350 реакторында сәулелендірілген болаттық пластикалық және беріктік шегінің өзгеруіне AISI 316 болат бойынша деректер негізінде алынған теңдеулер көмегімен талдау жасалады. Сондай-ақ біртекті деформация өзгеруі талданады.

TENSILE PROPERTY CORRELATION FOR IRRADIATED STAINLESS STEEL

G.Z. Ganeyev, T.E.Turkebaev, A.N. Karpikov

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

The changes in yield strength of 08X16N11M3 stainless steel irradiated in fast reactor BN-350 were analyzed and equation were developed to describe the yield strength and ultimate tensile strength behavior. The correlation equations include the irradiation parameters: displaced atoms, helium content, and irradiation temperature. The uniform elongation data were characterized in terms of the yield and ultimate tensile strength.

УДК 539:548

ЗАВИСИМОСТЬ СКОРОСТИ ПОЛЗУЧЕСТИ БЕРИЛЛИЯ ОТ НАПРЯЖЕНИЯ И ТЕМПЕРАТУРЫ В УСЛОВМЯХ РЕАКТОРНОГО ОБЛУЧЕНИЯ

Карпиков А.Н., Туркебаев Т.Э., Ганеев Г.З.

Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Благодаря хорошим ядерно-физическим свойствам бериллий привлекает все большее внимание исследователей и конструкторов при разработке и создании образцов атомной техники [1]. Малая величина сечения поглощения нейтронов атомов бериллия и легкость отдачи одного из собственных нейтронов, низкий атомный вес и высокий коэффициент замедления в сочетании со значительной прочностью, коррозионной стойкостью и сравнительно высокой температурой плавления делают бериллий перспективным материалом для элементов замедлителя и отражателя атомных реакторов. Применение бериллия при изготовлении отражателей для возвращения нейтронов в активную зону реактора позволяет уменьшить размеры активной зоны, повысить рабочую температуру и обеспечить равномерное распределение потока нейтронов и увеличить мощность реактора. При этом хотя бериллий и увеличивает капиталозатраты при строительстве реактора, но благодаря получающейся при его использовании в реакторе экономии в балансе нейтронов он позволяет снизить стоимость топливного цикла.

Облучение бериллия быстрыми частицами способствует образованию и накоплению в нем обычных радиационных дефектов, а также ядер гелия и трития в результате протекания ядерных реакций на атомах бериллия. При определенных параметрах облучения эти эффекты могут вызывать существенное изменение физико-механических свойств материала, в том числе прочности и пластичности.

Основными факторами, определяющими радиационную стойкость и, следовательно, работоспособность бериллийсодержащих материалов в ТЯР, являются флюенс нейтронов термоядерного спектра и уровень температурно-силовых воздействий [1]. Поэтому важное значение приобретает исследование влияния напряжения и температуры на деформацию таких структур в условиях интенсивного нейтронного облучения.

Бериллий, имеющий гексагональную плотноупакованную решетку, характеризуется низкой пластичностью и высокой хрупкостью. Это связано с недостаточным количеством активных независимых систем скольжения, обеспечивающих распространение деформации через границы соседние зерна поликристалла. Для улучшения его пластических свойств используются специальные технологические средства, в частности, получение поликристаллов с минимально возможным размером зерен. Несмотря на сильную анизотропию свойств монокристаллов Be, поликристаллы, полученные при помощи горячего прессования (ГП) и горячего изостатического прессования (ГИП) практически изотропны. В первую очередь улучшение пластичности и изотропности ГП и ГИП Be связываются с ролью границ зерен, главным образом за счет зернограничного проскальзывания. Однако можно предположить и другой механизм этого явления.

Дислокационное скольжение в Be может осуществляться по базисным, призматическим и пирамидальным плоскостям. Напряжение скольжения по призматической плоскости примерно в пять раз выше, чем по базисной (еще более высокое по пирамидальной), поэтому базисное скольжение является наиболее важным видом деформации бериллия; оно и определяет механические свойства поликристаллического бериллия. Вследствие этого при равновероятном распределении зерен по разориентировкам, чем меньше размер зерна, тем более изотропны свойства поликристалла, несмотря на анизотропию каждого зерна.

Базисное скольжение дислокаций по плоскостям $\{0001\}$ в направлениях $\langle 11\bar{2}0\rangle$ контролируется их взаимодействием с атомами примеси, их небольшими скоплениями и неподвижными дислокациями “леса” (с вектором Бюргерса c+a), плотность которых составляет $\sim 10^8$-10^9см$^{-2}$. Кроме того, облучаемый бериллий подвержен интенсивному газовому распуханию, поэтому при расчете деформации необходимо учитывать также взаимодействие дислокаций и газонаполненных пор.

С учетом вышеизложенного для описания ползучести ГП и ГИП бериллия, можно принять следующие приближения. Пусть модельный металл содержит краевые дислокации с плотностью ρ_n и другие дефекты кристаллической решетки нерадиационного (атомы примеси, частицы второй фазы и др.) и радиационного (кластеры, дислокационные петли, поры) происхождения с плотностью ρ_p. Под действием внешнего приложенного напряжения σ часть дислокаций способна к скольжению, другая же выступает в качестве “стопоров” на пути их движения. Процесс деформации осуществляется следующим образом [2]: в некоторый момент времени дислокация закреплена на барьерах (дислокациях “леса”, атомах примеси и др.). Спустя время t она преодолевает их в результате переползания, поглощая радиа-

ционные точечные дефекты, или термоактивационно. Пройдя путем скольжения расстояние $L(\sigma)$ и преодолев часть барьеров силовым путем, дислокация вновь останавливается в устойчивой конфигурации. Затем этот процесс многократно повторяется, причем основной вклад в деформацию вносит скольжение дислокаций. Величина $L(\sigma)$ зависит от мощности и расположения дефектов-барьеров, причем под облучением необходимо учитывать все разнообразие дефектов решетки радиационного происхождения [3].

Средняя скорость движения дислокаций в этом случае будет равна $V=L(\sigma)/t$, где

$$t = \frac{t_T \cdot t_n}{t_T + t_n}, \qquad (1)$$

t_T и t_n - времена преодоления дислокацией препятствий за счет термоактивации и переползания соответственно, причем

$$t_T = \frac{1}{\nu}\exp\left(\frac{U(\sigma)}{kT}\right); \qquad (2)$$

$$t_n = \frac{\lambda}{2V_n}. \qquad (3)$$

Здесь ν - частота колебаний дислокационного сегмента, закрепленного своими концами на барьерах; $U(\sigma)$ - энергия активации преодоления дислокацией барьеров; k - постоянная Больцмана; T - температура; λ - средний размер дефектов; V_n - скорость переползания дислокаций вследствие поглощения радиационных точечных дефектов, определяемая соотношением

$$V_n = \frac{1}{b}(Z_I D_I C_I^0 - Z_V D_V C_V^0 + Z_V D_V C_V^1), \qquad (4)$$

b - величина вектора Бюргерса, Z_α ($\alpha = I,V$) - параметр, характеризующий взаимодействие дислокации с точечными дефектами типа α; C_α^0 - их концентрация на половине расстояния между стоками; C_V^1 - термически равновесная концентрация вакансий.

В случае, когда выполняется неравенство $t_n << t_T$, и дислокации преодолевают препятствия переползанием, выражение для скорости ползучести принимает вид

$$\dot{\varepsilon} = \frac{2L(\sigma)}{\lambda}\kappa\rho_n(Z_I D_I C_I^0 - Z_V D_V C_V^0 + Z_V D_V C_V^1). \qquad (5)$$

В противоположном случае $t_T << t_n$, при термоактивационном преодолении препятствий,

$$\dot{\varepsilon} = b\kappa\rho_n\nu L(\sigma)\exp\left(-\frac{U(\sigma)}{kT}\right). \qquad (6)$$

Здесь κ - доля скользящих дислокаций от полной их плотности. При $t_n \sim t_T$ необходимо учитывать оба эти выражения.

В процессе деформации при достаточно больших напряжениях необходимо учитывать также процесс размножения дислокаций. Зависимость плотности дислокаций в кристалле, не связанных в субграницах, от внешнего приложенного напряжения согласно [4] равна

$$\rho = \begin{cases} \rho_0, & \text{ï ðè } \sigma \le \sigma_0 \\ (\sigma/\alpha\mu b)^2 & \text{ï ðè } \sigma > \sigma_0, \end{cases} \qquad (7)$$

где ρ_0 - исходная плотность дислокаций, μ - модуль сдвига, α - параметр, зависящий от взаимодействия дислокации с препятствием, σ_0 - напряжение, определяемое соотношением

$$\sigma_0 = \alpha\mu b\,(\rho_0)^{1/2}. \qquad (8)$$

Модуль сдвига в свою очередь зависит от температуры; согласно [5]

$$\mu = \mu_0\left(1 + \frac{(T-300)}{T_m}\frac{T_m}{\mu_0}\frac{d\mu}{dT}\right). \qquad (9)$$

Энергия активации преодоления дислокацией барьеров также зависит от приложенного напряжения и равна

$$U(\sigma) = U_0\,[1 - \beta(\sigma/\sigma_{ст})], \qquad (10)$$

где β - коэффициент порядка единицы, $\sigma_{ст}$ - критическое напряжение сдвига.

Коэффициенты Z_I и Z_V, характеризующие взаимодействие дислокаций с точечными дефектами, можно представить в виде [2]:

$$Z_\alpha = \frac{2\pi}{\ln\left|\dfrac{6(1-\nu)\pi kT}{\mu b(1+\nu)\Delta V_\alpha\sqrt{\pi\rho_n}}\right|}; \qquad (11)$$

где ν - коэффициент Пуассона, ΔV_α - релаксационный объем точечного дефекта типа α.

Произведения $D_\alpha C_\alpha^0$ можно определить из соотношения

$$D_\alpha C_\alpha^0 = \frac{K}{k_\alpha^2}, \qquad (12)$$

где K - интенсивность облучения, k_α^2 - мощность всех стоков в образце, которая зависит в том числе от дозы облучения.

На основании приведенных соотношений рассчитаны зависимости скорости ползучести от напряжения для ряда температур. Полученные результаты представлены на рис. 1 и согласуются с экспериментальными данными [6], что демонстрирует применимость данного подхода к описанию термической ползучести бериллия. В вычислениях использованы параметры бериллия из [1,5,6]. Величина $L(\sigma)$ находилась при помощи компьютерного моделирования в соответствии с [7].

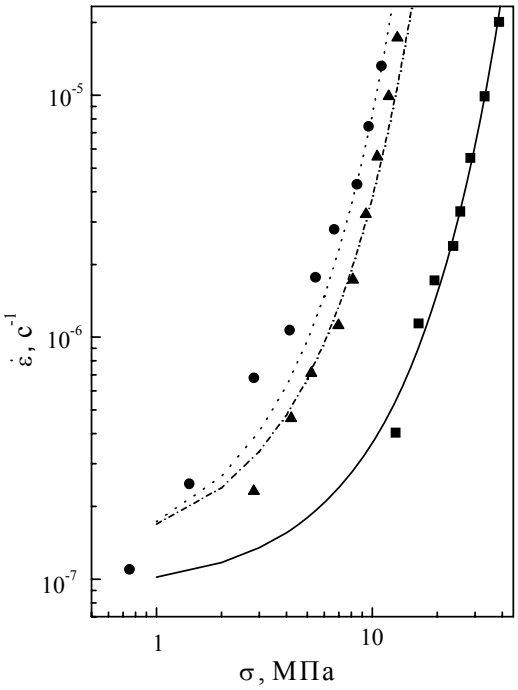


Рисунок 1. Зависимость скорости ползучести от напряжения при различных температурах. Точками изображены экспериментальные данные [6], кривыми – результаты расчетов: !, ——— - T=973K; %, – – – - T=1088K, #, – – – - T=1123K.

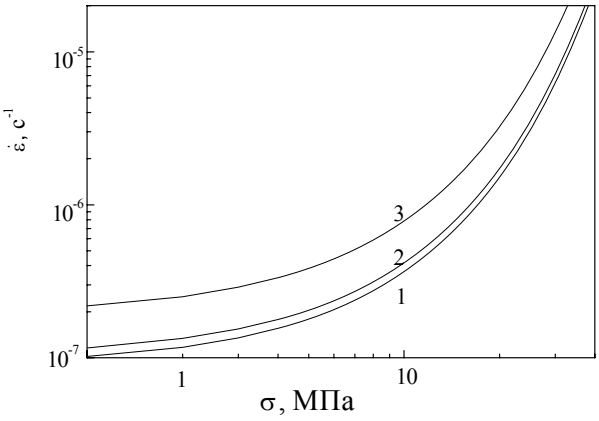


Рисунок 2. Зависимость скорости ползучести бериллия от напряжения в условиях нейтронного облучения. 1 - термическая компонента; 2 – радиационная; 3 – полная скорость ползучести

Предложенный механизм позволяет также учитывать влияние на скорость ползучести реакторного облучения. В качестве иллюстрации на рисунке 2 приведена зависимость скорости ползучести бериллия от напряжения при интенсивности облучения K=5·10^{-7}сна/с и T=973K.

Одинаковый характер зависимости термической и радиационной компонент свидетельствует о том, что основным процессом, определяющим скорость ползучести в обоих случаях, является скольжение дислокаций. При меньших температурах и больших интенсивностях облучения вклад радиационной ползучести становится превалирующим.

На рисунке 3 приведена рассчитанная согласно изложенному формализму зависимость скорости ползучести бериллия от напряжения при различных значениях интенсивности внешнего облучения и одинаковой температуре. Очевидно, что в рамках данных приближений увеличение интенсивности облучения, выражающееся в возрастании плотностей точечных дефектов, приводя к существенному повышению скорости ползучести, тем не менее не меняет сам характер ее зависимости от напряжения.

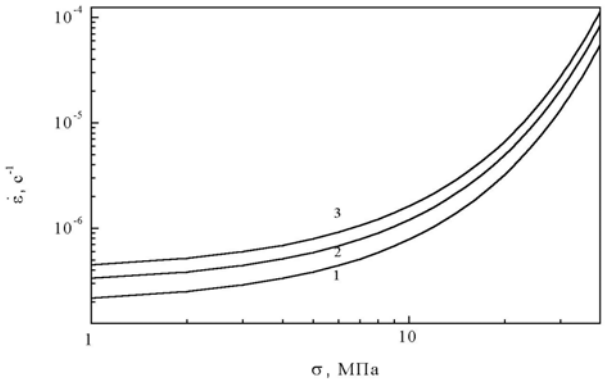


Рисунок 3. Зависимость скорости ползучести бериллия от напряжения при температуре 973K и интенсивности облучения 5x10^{-7} (1), 10^{-6} (2) и 1.5x10^{-6} сна/с.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гольцев В.П., Серняев Г.А., Чечеткина З.И. Радиационное материаловедение бериллия. Минск. Наука и техника., 1977. 96 с.
2. Пятилетов Ю.С. Температурная зависимость скорости радиационной ползучести. // ФММ. 1982. Т. 54. Вып. 6. С. 1080 – 1087.
3. Карпиков А.Н., Кирсанов В.В., Кислицин С.Б., Пятилетов Ю.С., Туркебаев Т.Э., Тюпкина О.Г. Использование результатов ЭВМ-моделирования в расчетах характеристик радиационного упрочнения, ползучести и выделений новых фаз в металлах и сплавах. Препринт 88-10 ИЯФ АН КазССР. Алма-Ата. 1988. 44 с.
4. Пуарье Ж.П. Высокотемпературная пластичность кристаллических тел. М., Металлургия. 1982. 272 с.
5. Фрост Г.Дж., Эшби М.Ф. Карты механизмов деформации. Челябинск. Металлур-гия, Челябинское отделение. 1989. 328 с.
6. Бериллий. Наука и технология. Под ред. Д.Вебстера, Г.Дж. Лондона, Д.Р. Флойда и Дж. Н. Лоува. М. Металлургия, 1984. 624 с.

7. Ибрагимова Д.Ш., Карпиков А.Н., Назырова Д.А., Пятилетов Ю.С., Сушкова Н.С., Тюпкина О.Г. Анализ характеристик движения дислокаций на основе результатов компьютерного эксперимента. Препринт 1-94 ИАЭ НЯЦ РК. Алма-Ата. 1994. 32 с.

РЕАКТОРЛЫҚ СӘУЛЕЛЕНДІРУ ЖАҒДАЙЫНДА БЕРИЛЛИЙДІҢ ЖЫЛЖЫМАЛЫЛЫҚ ЖЫЛДАМДЫҒЫНЫҢ КЕРНЕУ МЕН ТЕМПЕРАТУРАҒА ТӘУЕЛДІЛІГІ

Карпиков А.Н., Туркебаев Т.Э., ГанеевГ.З.

ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан Республикасы

Реакторлық сәулелендіру әсеріне ұшыраған бериллий жылжымалылығының теориялық моделінің сипаттамасы келтірілген. Деформация процесінде дислокацияның сырғанауы да және олардың жылжып кетуі де ескеріледі Есептеме нәтижелері эксперименттік деректермен қанағаттанарлықтай үйлеседі. Реактордың айрықша әсеріне байланысқан әртүрлі температурадағы кернеу мен сәулелендіру қарқындылығына бериллий жылжымалылығының тәуелділігі есептелген.

DEPENDENCE OF CREEP RATE OF BERYLLIUM FROM A STRESS AND TEMPERATURE IN THE REACTOR ENVIRONMENT

A.N. Karpikov, T.E. Turkebaev, G.Z. Ganeyev

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

The description of theoretical model of creep of beryllium were under affecting of reactor irradiation is given. During a strain is allowed as glide of dislocations, and them climb. The results of calculations are satisfactorily compounded with experimental data. The dependence of creep rate of beryllium from a stress is calculated at various temperatures and intensities of irradiating, characteristic for operation of a reactor.

УДК 539.173

THE SYSTEMATICS FOR DESCRIPTION OF FRAGMENT MASS YIELDS IN NEUTRON AND PROTON INDUCED FISSION OF ACTINIDES

D.M. Gorodisskiy, S.I. Mulgin, A.Ya. Rusanov, S.V. Zhdanov

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

Experimental and analytical works have been performed to provide information on relative yields, mean values and variances of masses and kinetic energies of fragments from fission of actinide nuclei through independent fission modes. The revealed regularities in behavior of these characteristics in their dependence on nucleonic composition of fissile actinides and incident particle (proton and neutron) kinetic energies have been used for developing a new systematics of fragment mass yields from fission of target-nuclei Th-Bk at incident particle energies 5-200 MeV.

1. INTRODUCTION

Numerous experimental investigations of the mass and energy distributions (MEDs) of fragments in the fission of nuclei from Pb to No [1] have confirmed the validity of a hypothesis about the existence of independent fission modes for the first time stated by Turkevich and Niday [2]. This hypothesis has received its physical substantiation in theoretical works by Pashkevich [3] and Brosa et al. [4]. These works showed that multimodality of the MEDs of fission fragments is caused by the valley structure of the deformation potential energy surface of a fissioning nucleus.

In the framework of the multimodal concept it is usually assumed that the experimental MED from fission of actinide nuclei consists of different MEDs for three independent fission modes: one symmetric (S) and two asymmetric – Standard 1 (S1) and Standard 2 (S2). Mode S is mainly conditioned by the liquid-drop properties of nuclear matter, and, therefore, its most probable values of fragment masses M are close to $A_{CN}/2$. The asymmetric mode S1 with average masses of the heavy fragments $M_H \approx 134$ and high kinetic energies is due to the formation of spherical heavy fragments with Z_{FH} and N_{FH} close to the magic numbers 50 and 82, respectively. The predominant asymmetric mode S2 is characterized by average masses of the heavy fragments $M_H \approx 140$, and kinetic energies is by 10 – 12 MeV less than those of the mode S1. Usually the origin of mode S2 is attributed to the deformed neutron-shell closure N $\approx$ 88 in the heavy fragments, see e.g. Ref. [5]. Recently in Ref. [6] the existence of additional asymmetric mode S3 conditioned by the close-to-sphere shells formed in light fragments has been experimentally revealed.

In our opinion, one of the most perspective directions at elaborating the MED calculation technique applicable to practical needs consists in obtaining the quantitative information on the dependencies of the basic characteristics of distinct fission modes (relative mass yields, average fragment masses and charges, kinetic energies of fragments, variances of masses, charges and energies, etc.) for distinct fission modes on a nucleon composition and an excitation energy of a fissioning nucleus, revealing the main regularities of their behavior, and, then, reconstructing the observed MEDs as a superposition of the MEDs of the distinct modes.

In order to be successful in realization of this approach one needs a rather large set of experimental data useable for comparative quantitative analysis and, since the distinct modes are rarely observed in the fission of actinides directly, appropriate method for extraction of characteristics of the modes from the experimental MEDs.

An analysis of literature data shows that the main efforts of investigators in different countries, basically, are concentrated on studying spontaneous fission and low-energy neutron-induced fission of actinides. In particular, there is the only work [7], where experimental mass and energy distributions of fragments from neutron-induced fission of ^{238}U at neutron energies from 1 to 450 MeV have been measured in the framework of a uniform measuring technique.

In our opinion, the existing lack of high energy neutron induced fission data could be partially compensated if one involves into analysis the MEDs measured in reactions with protons due to following considerations. The heavy nucleus fission reaction passes through a stage of the compound nucleus formation, and, consequently, the MED of fragments from fission of the nucleus with given nucleon composition, excitation energy, and angular momentum does not depend on how the compound nucleus is formed. Protons, as well as neutrons, bring into the fissioning nucleus rather small angular momentum. In practice, of course, there are some features of direct and pre-equilibrium reactions with neutrons and protons, but, as preliminary analysis of data showed, that they have no decisive influence on the majority of the basic characteristics of distinct modes. This circumstance allows expanding desired experimental basis with respect to both increasing incident particle energy range and possibilities to studying the MEDs for important minor actinides from Np and Am isotopic chains, since the experiments with the Np and Am target nuclei in neutron induced fission are difficult enough due to the radiation safety requirements at work with the high radiotoxicitive target materials.

In this connection the mass and energy distributions in the proton induced fission of compound nuclei

^{234,236,237,239}Np, ^{239,240,241,243}Am, ^{245}Bk at proton energy $E_p = 10.3$ MeV; ^{234,236,237,239}Np, ^{240,241,243}Am at proton energy $E_p = 22.0$ MeV; ^{233}Pa and ^{236}Np at $E_p = 7.4 – 30.0$ MeV have been measured by the spectrometry of coincident fission fragments with surface-barrier detectors.

Another problem to be solve at realization of the multimodal approach is connected with the deconvolution of the experimental MEDs into the MEDs of distinct fission modes. In this purpose a new method of multicomponent analysis, which is free from any assumptions about the shapes of the mass distributions (MDs) of distinct modes, has been developed. This method was applied to the analysis of the available experimental information.

The results of this analysis allowed to reveal regularities in the behaviour of the fission fragment mass yields that, in particular, proved to be useful for developing the predictive systematics of the yields. The systematics has been realized as the computer code PYF (Program for Yields from Fission) allowing to calculate the pre- and post-neutron emission fragment mass yields from fission of target nuclei from Th to Bk in reactions with protons and neutrons at kinetic energies from 5 to 200 MeV.

2. EXPERIMENT

2.1 Experimental technique

The measurements have been accomplished with the external beams from Almaty's isochronous cyclotron U-150 that enables to accelerate protons in the energy range from 7.4 to 30.0 MeV with an energy step ~ 2 –3 MeV. A pair of Si-Au-surface-barrier detectors and a target device with 8 targets is located in the vacuum space of fission chamber. The targets of fissile isotopes represented layers with thickness 20 – 40 μg/cm^2 made from chlorides of corresponding elements by vacuum evaporation on backings from Al_2O_3 with thickness 60μg/cm^2. In all cases the enrichment for an investigated isotope was equal to or greater than 99.98%.

The MEDs have been measured by the method of the fast spectrometry of coinciding fragments with selecting the background events according the time-of-flight [8]. This version of the experimental technique differs from the wide-spread one in such a way that the short current signals with a pulse length ~ 7×10^{-8} s and a front ~ 5×10^{-9} s are used in the time and spectrometric channels. Due to this, the probability of "false" events, such as occasional coincidences of pulses from fragments belonged to different fission events and overlapping of the pulses "fragment – random charge particle", decreases almost by order of 10 in the comparison with the traditional technique.

During the experiment the following information has been recorded for every fission event:

- Q_1, Q_2 – the values of the charges induced by fragments in both detectors;
- τ_1, τ_2 – the rates of pulse rise;
- δT_{exp} – the difference in times-of-flight of two fragments.

This information was used for the preliminary selection of the fission events with the purpose to decrease the contribution of the random coincidences, the events distorted by the overlapping of the pulses, and the fission events accompanied by the fission fragment energy losses at scattering on the nuclei of targets or detectors. The selection procedure was as follows. The data on Q_1, Q_2 were used for calculating the values of kinetic energies E_k and masses M of both fragments on the basis of the conservation of a mass, energy and linear momentum. Then, these data and the data on the target-detector flight lengths were used to determine the calculated difference in times-of-flight δT_{cal}. The experimental values of δT_{exp} were corrected taking into account the time delays caused by the plasma effects in detectors [9]. The values of these corrections have been determined from the analysis of the data on τ_1, τ_2 according to Ref. [8]. The selection of the "true" fission events was based on the condition $|\delta T_{exp}-\delta T_{cal}| \le 2\ \sigma_{tot} \approx 4\times10^{-10}$ s, where σ_{tot} is the total resolution time of the method defined by both experimental errors and the uncertainties in the emission of pre- and post-fission neutrons.

The experimental technique due to the rather small "dead" time and low sensibility to the background of scattered charged particles allowed to use intensive proton beams (up to 2 μA) for measuring the MEDs in the vicinity and below the Coulomb barrier. The number of events accumulated in theses experiments was defined by the incident proton energy and the thickness of a given target and equals form $2\text{-}5\times10^5$.

The quality of experimental data on the MEDs obtained by the method of $(E_1\text{-}E_2)$-spectrometry is defined both experimental errors and correctness of the detector calibration procedure. The $(E_1\text{-}E_2)$-spectrometry with surface-barrier detectors requires taking into account, so called, pulse height defect caused by uncontrolled losses of the fragment kinetic energy (R) in the entrance window of detectors, at scattering on nuclei of silicon and due to the recombination of ions in plasma. The value of R has complicated dependence on E_k and M of fragments, and, moreover, the behavior of R(M,E) changes in dependence on the silicon characteristics and the detector operation conditions (bias voltage, radiation damage dose, temperature, etc). In the connection with complexity and sometimes impossibility to take into account the influence of all these factors, the dependence R(M,E) is usually described within different empirical equations, whose parameters for every given detector are determined experimentally.

In the majority of works on nuclear fission using the $(E_1\text{-}E_2)$- method the pulse height defect is taken into account within equations proposed in Ref. [10], where the values of parameters in the equations for R(M,E) do not reflect individual features inherent to different detectors. Another widespread method for describing the R(M,E)-dependencies with simple one-parametric equation is outlined in Ref.[11]. But sometimes the variation

of a single parameter is not enough for reproducing the features of the R(M,E) for each given detector.

Under this circumstances we used more universal calibration procedure proposed in our work [12], where the two-parametric empirical equation for the R(M,E) have been established on the basis of analysis of a wide set of literature data:

$$R(M,E)=\frac{0.55E}{1+13.9E/M}+\alpha ME+\beta E. \qquad (1)$$

Here α and β are the parameters taking into account the individual properties of a given detector at fixed bias voltage.

The verification of the acceptance boundary for Eq. (1) has shown that such definition of the R(M,E) reproduces with good accuracy the experimental data obtained for detectors with the resistivity $\rho \approx 200\text{-}2000\ \Omega$ cm at the bias voltage $U \approx 10\text{-}200$ V in a range of masses $M \approx 40\text{-}200$ amu and energies $E \approx 10\text{-}150$.

So, in this approach the dependence of the pulse charge Q on the fragment mass M and energy E is performed as:

$$Q(M,E)=B\left(E-\left(\frac{0.55E}{1+13.9E/M}+\alpha ME+\beta E\right)\right)+C. \qquad (2)$$

Here B is the scale coefficient, C is the zero shift value.

The values B and C are easily defined within a standard procedure if a precision pulse generator and several alpha-sources were used. The parameters α and β are defined from the ^{252}Cf spontaneous fission energy spectra according to the following equations:

$$\alpha=\left(2.997\frac{\langle P_L\rangle-C}{B}-3.953\frac{\langle P_H\rangle-C}{B}-7.593\right)\cdot 10^{-4},$$
$$\beta=0.04266\frac{\langle P_L\rangle-C}{B}-0.04355\frac{\langle P_H\rangle-C}{B}+1.0445. \qquad (3)$$

Here $\langle P_L\rangle$, $\langle P_H\rangle$ are the mean channel numbers of the light- and heavy-fragment groups in a measured ^{252}Cf spontaneous fission fragment spectrum.

If one transforms the charge matrix $N(Q_1,Q_2)$ into the matrix of the fragment masses and total kinetic energies $N(M,E_k)$ without taking into account the neutron emission effects, the matrix $N(M,E_k)$ must be symmetric with respect to mass M = A/2. In other words, for any values M and E_k the condition $N(M,E_k) = N(A\text{-}M,E_k)$ must be satisfied within the statistical error bars. The control check has shown that our experimental matrices meet this requirement.

In this work due to low counting rate from the ^{252}Cf spectrometric source the calibration procedure was accomplished only in the beginning and in the end of the experiments. During experiments the detector characteristics stability was monitored on mean values and variances of the Q_1 and Q_2 spectra from reactions 235U+p taken as reference.

The experimental technique described above was used for measuring the MEDs of fragments in the proton-induced fission of compound nuclei ^{234,236,237,239}Np, ^{239,240,241,243}Am, ^{245}Bk at proton energy $E_p = 10.3$ MeV; ^{234,236,237,239}Np, ^{240,241,243}Am at proton energy $E_p = 22.0$ MeV; ^{233}Pa and ^{236}Np at $E_p = 7.4 – 30.0$ MeV.

2.2 Corrections and experimental errors

In principle, the experimental MEDs measured with the method of the $(E_1\text{-}E_2)$-spectrometry are distorted by the influence of several factors such as the fragment energy losses in a target and the detector entrance window, as well as neutron effects due to neutron emission from a nucleus before fission, including the pre-equilibrium stage of the compound nucleus formation, and evaporation of prompt neutrons from fission fragments.

The energy losses mentioned above change the measured absolute value of total kinetic energy E_k and the E_1/E_2 ratio that make changes in measured mass-asymmetry M_2/M_1 of fragments. The scale of these alterations depend on charge, mass and kinetic energy of fragments as well as charge and mass of materials of the target backings, working layers and materials of the detector entrance window. So, the introduction of the corrections on energy losses requires rather intricate calculations.

At that, one could note that the influence of the energy losses on the experimental results depends on where the losses happen. Losses in target working layers and detector entrance windows, on conditions that their parameters are similar, cause similar alterations of energies of fragments recorded by both detectors that leads to some broadening of the measured MEDs and decreasing absolute value of E_k but, on average, does not violate the condition $N(M,E_k) = N(A\text{-}M,E_k)$. In detail these effects have been considered in Ref. [13], where, in particular, it was shown that they have strong influence only in vicinities of sharp peaks and narrow valleys which are observed at low-energy neutron induced and spontaneous fission of actinides. In our incident particle energy range the MEDs are rather smoothed, therefore the influence of these effects could be neglected.

The energy losses in target backings, besides decreasing the absolute values of E_k, makes asymmetric alterations in the MEDs, violating the condition $N(M,E_k) = N(A\text{-}M,E_k)$, especially at large mass-asymmetry of fragments. In our opinion, this factor could be taken into account effectively if during the experiment all targets are oriented so that only one of two detectors registers fragments passed through the backings and during the calibration a pure backing is put between this detector and the calibration source. So, in present work the corrections on the losses in target backings were introduced in the calibration procedure.

In order to correct the experimental matrices $N(M,E_k)$ on the neutron emission effects one needs information on number of pre-and post-fission neutrons ν, their energies and emission direction for every fission

event or, at least, matrices $\nu_{pre}(M,E_k)$ and $\nu_{post}(M,E_k)$. As a rule, such information is not available, therefore we had to carry out the multimodal analysis with uncorrected experimental MEDs. The consequences of this limitation for our results could be estimated from the following considerations.

The emission of neutrons due to direct and pre-equilibrium reactions of light incident particle and target nuclei as well as evaporation of neutrons from compound nuclei leads to the formation of whole spectra of fissioning nuclei and their excitation energies. So, the measured MEDs is composed of the MEDs from fission of compound nuclei with masses A_{CN}, A_{CN-1}, A_{CN-2} and so on. The extraction of the MED for fission of a nucleus with given mass and excitation energy is an important but rather complicate scientific task required detailed information on the MEDs from fission, at least, of two neighbouring isotopes at different excitation energies. However, from practical point of view it is sufficient to know the composed MEDs in their dependence on incident particle energy, omitting the "true" excitation energy scale.

Additionally, one should note that the emission of every pre-fission neutron decreases the mean value of the fragment mass distribution by 0.5 amu that, in case of fission of a wide spectra of compound nuclei, introduces the dissymmetry to the "true" composed MD. However, in the matrix $N(Q_1,Q_2)$ measured with the $(E_1\text{-}E_2)$-method all events with $M_1 = M_2$ are situated along the main diagonal of the matrix independently on the mass of fissioning nucleus, therefore the measured MEDs are symmetric with respect to A/2, where $A = A_{CN} - \nu_{pre}$ is the mean mass of fissioning compound nuclei. In case of great number and variance of emitted pre-fission neutrons, for example at high incident light particle kinetic energies, the $(E_1\text{-}E_2)$-method is enable to give information only on main features of the MDs. But, in our case, the average number of pre-fission neutrons $\nu_{pre} \leq 2$ ($A/2 \leq A_{CN}/2 - 1$), therefore this effect is rather small.

If the information on the $\nu_{post}(M,E_k)$ is not available, in order to estimate the mass and energy yields for primary fragments (fragments before prompt neutron emission) one can use the simplified procedure of correction of experimental fragment yields which was considered in details in Refs. [14,15]. Fig. 1 illustrates the results of application of this procedure to relative mass yields Y(M), the average total kinetic energies of fragments $E_k(M)$ and variances of kinetic energy $\sigma^2_E(M)$ measured in reaction $^{235}U + p(12.5\ MeV)$. The experimental data on the average post-fission neutron number $\nu(M)$ for the reaction $^{235}U + p(12.7\ MeV)$ have been borrowed from Ref.[16]. Solid curve shows the smoothed $\nu(M)$ used for the correction. One can see that the post-fission neutron correction influences strongly only on absolute values of E_k and does not cause significant changes in the M-dependence of this quantity. In case of Y(M) and $\sigma^2_E(M)$ the correction effect is rather small.

One of the important features inherent to the correction procedure consists in that if number of neutrons evaporated from a fragment with mass M is proportional to M the difference of primary and experimental (provisional) masses equals to nil independently on absolute number of emitted neutrons. Similar situation is observed in fission at high excitation energy, when the "saw-like" structure in the dependence of $\nu(M)$ seen in Fig. 1 becomes smooth and this quantity can be approximated by a linear function. At thermal neutron induced and spontaneous fission the "saw-like" structure is more pronounced, and the effect of the correction Y(M) on post-fission neutron emission increases.

Resuming all features of neutron effects mentioned above one can conclude that the effects conditioned by pre-fission emission increase with growth of incident particle energy, while the effects due to post-fission emission decrease. Both type of neutron effects have strong influence on the absolute values of total kinetic energy of fragments and relatively small on shapes of the MEDs.

The relative errors of the experimental MED characteristics, such as average total kinetic energy E_k, variances of mass σ^2_M and energy σ^2_E yields, have been determined from scattering of homogeneous data. With this purpose for the reaction $^{235}U+p(10.3\ MeV)$ we have carried out 7 independent measurements with using different targets and detectors. For ΔE_k the relative errors equal 0.4 MeV, for σ^2_M and $\sigma^2_E \approx 2\%$.

In order to study the repeatability of the experimental MED shapes we transformed linearly the MEDs for 7 independent measurements to the general mean values of E_k, σ^2_M and σ^2_E and compared them in Fig.2. One can see that for Y(M) and $E_k(M)$ the scatter of data is practically invisible. For $\sigma^2_E(M)$ some divergence of the data is observed in vicinities of A/2 and maximums, as well as in the wings. However, in these cases too the experimental scatter of data essentially less than the scale of the characteristic alterations of these quantity. So, we can hope that the relative accuracy of our experimental data is sufficient to studying the behavior of basic characteristics of distinct modes.

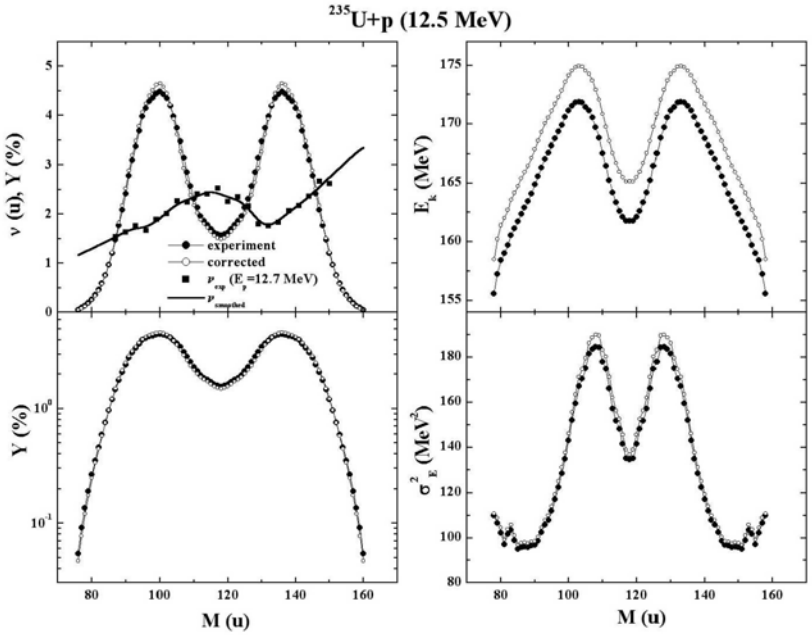


Figure 1. Experimental and primary fragment relative mass yields Y(M), the average total kinetic energies of fragments E_k(M) and variances of kinetic energy σ^2_E(M) for reaction $^{235}U + p(12.5)$ MeV. The experimental data on ν(M) borrowed from Ref. [16]

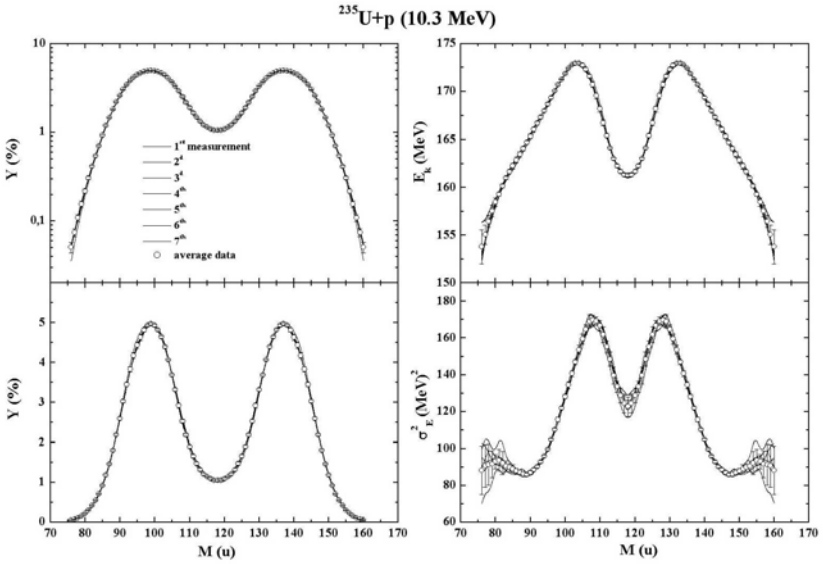


Figure 2. Experimental relative mass yield Y(M), the average total kinetic energy of fragments E_k(M) and variance of kinetic energy σ^2_E(M) for 7 independent measurements in the reaction $^{235}U + p(10.3)$ MeV

2.3 Experimental results

The experimental averaged total kinetic energies E_k, the kinetic energy variances σ^2_E, and mass distribution variances σ^2_M in the dependence on proton energy E_p and nucleonic composition of compound nuclei are performed in Tables 1-4. The corrections on the energy losses in target working layers and the neutron effects were not introduced.

Table 1. Averaged total kinetic energy E_k, the kinetic energy variance σ^2_E, and mass distribution variance σ^2_m at proton energy E_p = 10.3 MeV

Compound nucleus	E_k (MeV)	σ^2_E (MeV)^2	σ^2_M (amu)^2
^{233}Pa	163.8	95	494
^{234}Np	169.8	128	391
^{236}Np	168.9	128	391
^{237}Np	170.8	122	411
^{239}Np	169.3	125	410
^{239}Am	174.0	141	371
^{240}Am	173.7	140	372
^{241}Am	174.3	140	377
^{243}Am	175.5	141	373
^{245}Bk	177.6	156	366

Table 2. Averaged total kinetic energy E_k, the kinetic energy variance σ^2_E, and mass distribution variance σ^2_m at proton energy E_p = 22.0 MeV

Compound nucleus	E_k (MeV)	σ^2_E (MeV)^2	σ^2_M (amu)^2
^{233}Pa	162.6	124	384
^{234}Np	167.2	157	318
^{236}Np	166.4	159	338
^{237}Np	166.8	147	342
^{239}Np	167.9	147	358
^{240}Am	173.6	169	322
^{241}Am	173.6	172	329
^{243}Am	173.7	174	334

Table 3. Averaged total kinetic energy E_k, the kinetic energy variance σ^2_E, and mass distribution variance σ^2_m from fission of ^{233}Pa

Proton energy (MeV)	E_k (MeV)	σ^2_E (MeV)^2	σ^2_M (amu)^2
7.4	164.5	85	520
12.5	163.0	107	460
13.5	162.8	108	440
16.5	163.7	108	451
18.0	163.2	115	429
20.0	162.9	119	401
24.0	162.2	126	390
26.0	162.2	126	387
28.0	161.4	135	378
30.0	161.3	137	370

Table 4. Averaged total kinetic energy E_k, the kinetic energy variance σ^2_E, and mass distribution variance σ^2_m from fission of ^{236}Np.

Proton energy (MeV)	E_k (MeV)	σ^2_E (MeV)^2	σ^2_M (amu)^2
7.4	170.3	110	445
12.5	168.0	139	386
13.5	167.6	141	375
15.0	167.1	146	367
16.5	167.1	149	356
18.0	167.8	153	352
28.0	166.1	164	326
30.0	166.0	164	323

3. MULTI-MODAL ANALYSIS OF MEDS

3.1 Method of analysis

Any method of multi-component analysis [17-24] is based on the assumption that experimental MEDs $Y_{exp}(M,E_k)=200\%\times N(M,E_k)/N_f$, where N_f is a number of recorded fission events, consist of the MEDs of independent fission modes. In this case, for every cell of two-dimensional matrix $Y_{exp}(M,E_k)$ the following relation is valid:

$$Y_{\exp}(M,E_k)=Y_{\exp}(M)Y_{\exp,M}(E_k)=\sum_i Y_i(M)Y_{i,M}(E_k)\,. \quad (4)$$

Here $Y_{exp}(M)$ - is an experimental relative yield of fragments with mass M, $Y_{exp,M}(E_к)$ - is the normalized to 1 distribution of total kinetic energies for these fragments, index i - defines the fission mode, $Y_i(M)$ - is a relative yield of mass M for i-mode, $Y_{i,M}(E_к)$ - is the normalized to 1 distribution of total kinetic energies for the fragments with mass M for i-mode.

The distributions $Y_i(M)$ and $Y_{i,M}(E_к)$ can be approximated by appropriate mathematical functions, whose parameters are determined by a fit to experimental MEDs, in particular, with the χ^2-method. Frequently, the yields $Y_i(M)$ are approximated by Gaussians.

In our opinion, the usage of either this or any other function for approximating $Y_i(M)$ is not necessary. The multi-component analysis of the MEDs can be fulfilled without any assumptions about the shapes of $Y_i(M)$ which, in this case, could serve an important source of information on the formation of distinct fission modes. By now we proposed two versions of such approach to analyzing the MEDs on the basis of Eq. (4) from following considerations.

One can show that

$$\begin{aligned}
&Y_{\exp}(M)=\sum_{Ek}Y_{\exp}(M,E_k)=\sum_i Y_i(M)\sum_{Ek}Y_{i,M}(E_k)=\sum_i Y_i(M),\\
&\left\langle E_k^n\right\rangle_{\exp}(M)=\sum_{Ek}E_k^nY_{\exp}(M,E_k)/\sum_{Ek}Y_{\exp}(M,E_k)= \qquad ,\\
&=\sum_i Y_i(M)\Big(\sum_{Ek}E_k^nY_{i,M}(E_k)\Big)/\sum_{Ek}Y_{\exp}(M,E_k)=\sum_i\left\langle E_k^n\right\rangle_i Y_i(M)/Y_{\exp}(M)
\end{aligned} \quad (5)$$

Both relations in (5) depends linearly on $Y_i(M)$, therefore for every mass M at any number of independent modes k one can build the system from k linear equations just changing power n in the second relation from 1 to k-1.

In three-modal case (S1, S2, and S3) Eqs.(5) reduce to the equation system outlined in Refs. [6,25]:

$$\begin{aligned}
&Y_{\exp}(M)=\sum_i Y_i(M),\\
&\bar{E}_{k,\exp}(M)=\sum_i\frac{Y_i(M)}{Y_{\exp}(M)}\bar{E}_{k,i}(M),\\
&\sigma^2_{E,\exp}(M)=\sum_i\left\{\frac{Y_i(M)}{Y_{\exp}(M)}\sigma^2_{E,i}(M)+\sum_j\frac{Y_i(M)Y_j(M)}{Y^2_{\exp}(M)}\left[\bar{E}_{k,i}(M)-\bar{E}_{k,j}(M)\right]^2\right\}.
\end{aligned} \quad (6)$$

Here, $\bar{E}_{k,i}(M)$ - is the M-dependence for average total kinetic energy of fragments, $\sigma^2_{E,i}(M)$ - is the M-dependence for variance of kinetic energy, indices i and j define S1, S2 or S.

In order to solve Eqs. (5) or (6), one needs to define the expressions for $Y_{i,M}(E_k)$ which, in particular, are proposed in our work [6] and will be described in detail below. However, one should note that any mathematical approximation of $Y_{i,M}(E_k)$ does not take into account the statistical scatter of the experimental MEDs, and in case of approximated $Y_{i,M}(E_k)$, Eq. (4) also becomes approximated $Y_{\exp}(M,E_k) \approx \sum_i Y_i(M) Y_{i,M}(E_k)$ that can lead to undesired dependence of the analysis results on the statistical uncertainties of the experimental MEDs.

In order to avoid this effect in Ref. [25] we suggested more general method that allows determining the yields $Y_i(M)$ with taking into consideration the experimental uncertainties of $Y_{exp,M}(E_к)$. This method is based on minimizing the square of difference $\left\{ Y_{\exp}(M,E_k) - \sum_i Y_i(M) Y_{i,M}(E_k) \right\}^2$ with the χ^2-method. Then, the functional $\chi^2(M)$ can be written as:

$$\chi^2(M) = \sum_{Ek} \left\{ \frac{1}{\delta^2(M,E_k)} \left[\sum_i Y_i(M) Y_{i,M}(E_k) - Y_{\exp}(M,E_k) \right]^2 \right\}, \quad (7)$$

Here $\delta(M,E_k)$ - is the experimental error of $Y_{exp,M}(E_к)$.

The $\chi^2(M)$ achieves the relevant minimal value if the conditions $\partial\chi^2(M)/\partial Y_i(M) = 0$ are simultaneously complied. Since the derivatives depends on $Y_i(M)$ linearly the determination of optimal values for $Y_i(M)$ reduces to solving the system of linear equations:

$$\frac{\partial\chi^2(M)}{\partial Y_i(M)} = 2\sum_{Ek} \left\{ \frac{Y_{i,M}(E_k)}{\delta^2(M,E_k)} \left[\sum_j Y_j(M) Y_{j,M}(E_k) - Y_{\exp}(M,E_k) \right] \right\} = 0 . \quad (8)$$

From Eqs. (8) one can see clearly that, as distinct from initial approach (5), this method allows to take into account the experimental uncertainties of the MEDs. Indeed, the control calculations have shown that at sufficient statistical accuracy of experimental data Eqs. (5) and (8) give practically the same results. However, on the whole, the solutions based on Eqs. (8) are more stable with respect to experimental uncertainties and can be used at lower statistics of the MEDs.

In works [6,25] the equation systems (5) and (8) have been used for three-modal analysis of the MEDs from fission of a wide range of compound nuclei from ^{226}Th to ^{245}Bk. In this case the most interesting result has been obtained for shapes of the MDs for the high-energy mode S1. For ^{226}Th turned out anomalously broad, and for the rest 10 nuclei the splitting of the $Y_{S1}(M)$ onto two peaks with stable average masses $M_H \approx 134$ for the first peak and $M_L \approx 83$ for the second one. The appearance of the second peak, which is characteristics of stable position in light-fragment group, has been interpreted as a manifestation of the mode S3 predicted theoretically in Ref. [4] and conditioned by the formation of spherical shell closures in light fragments.

So, we had to include the additional mode S3 into the multi-modal analysis that required to increase a number of equations in system (8) from 3 to 4, therefore in present work we used four-component version of the analysis.

As it was mentioned before, in order to obtain the information on $Y_i(M)$ one must define the approximation function for $Y_{i,M}(E_k)$. In present work, as well as in Refs. [6,25], this problem was solved on the basis of the detailed study of the properties of the symmetric mode S for nuclei from ^{186}Os to ^{235}U outlined in Refs. [26,27], where it was established that the dependencies $\bar{E}_{k,i}(M)$ and $\sigma^2_{E,i}(M)$ could be described with good accuracy on the basis of following relations:

$$\begin{aligned} &\bar{E}_k(M) = \bar{E}_k(A/2)(1-\mu^2)(1+\lambda\mu^2), \\ &\bar{E}_k^2(M)/\sigma_E^2(M) = const. \end{aligned} \quad (9)$$

Here $\mu = 1 - 2M/A$, λ characterizes the deviation of $\bar{E}_{k,i}(M)$ from simple parabolic dependence proposed in Ref. [28].

In Refs. [25,26] it was also shown that the distributions $Y_{S,M}(E_k)$ are not Gaussians and are characterized by elongated low-energy tails. At this, the coefficients of dissymmetry γ_1 and excess γ_2 are independent on fragment masses, excitation energy, as well as nucleonic composition of fissioning nuclei,, and equal –0.1 and 0.0, correspondingly.

For describing distributions with small values of γ_1 and γ_2 it is convenient to use the Charlier's distribution that in our case can be written as:

$$\begin{aligned} &Y_M(E_k) = \frac{f(u)}{\sigma_E(M)} \left[1 - \frac{\gamma_1}{6}(3u - u^3) + \frac{\gamma_2}{24}(u^4 - 6u^2 + 3) \right], \\ &u = \frac{E_k - \bar{E}_k(M)}{\sigma_E(M)}, \quad f(u) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{u^2}{2}\right). \end{aligned} \quad (10)$$

At $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$ the Charlier's distribution is identical to Gaussian.

We supposed that all properties mentioned above also can be extended over the asymmetric modes. But, whereas for $Y_{S,M}(E_k)$ we have taken the experimental values $\gamma_1 = -0.1$ and $\gamma_2 = 0$, the optimal values of these

coefficient for the asymmetric modes S1, S2, and S3 have been determined from preliminary analysis of all totality of the MEDs showed that $\gamma_1 = \gamma_2 = -0.2$. The parameter λ was the same for all fission modes.

The analysis procedure was the iteration process realized with the standard code MINUIT [29]. For given values of $\bar{E}_{k,i}(M)$, $\sigma^2_{E,i}(M)$ and λ the distributions $Y_{i,M}(E_k)$ were calculated with Eqs. (9) and (10). Then, the relative yields $Y_i(M)$ for all fragment masses were determined from solutions of Eqs. (8), and approximating matrix $\sum_i Y_i(M)Y_{i,M}(E_k)$ was built. Then, the value of χ^2 used for the verification of a degree of conformity of $Y_{exp}(M,E_k)$ and $\sum_i Y_i(M)Y_{i,M}(E_k)$ was calculated, and new values of $\bar{E}_{k,i}(M)$, $\sigma^2_{E,i}(M)$ and λ were determined. In all cases the process of determining 9 optimal description parameters converged at values χ^2 less than 1 per a degree of freedom.

The uncertainties of the values extracted from the analysis ($Y_i(M)$, $\bar{E}_{k,i}(M)$, and $\sigma^2_{E,i}(M)$) have been estimated with taken into account the convergence conditions, the influence of these values on the value of χ^2, and statistical errors of experimental data. The control check has shown that these values error bars estimated for reaction $^{235}U + p(10.3\ MeV)$ are close to that determined from the scatter of these characteristics extracted form the MEDs for 7 independent measurements mentioned above.

3.2 Results of analysis

All totality of the experimental data obtained has been analyzed in the framework of the method described above. The basic characteristics of relative mass yields for distinct fission modes are presented in Tables 5-8.

Typical results of the MEDs decomposition based on Eqs. (4) - (6) are shown in Fig. 3, where the experimental data on the relative mass yield Y(M) and mass distributions of independent fission modes are performed for the fission of compound nuclei are performed for ^{233}Pa and ^{236}Np at $E_p = 7.4$, 18.0, and 30.0 MeV, and in Fig. 4, where the same distributions are performed for ^{233}Pa, $^{234,236,237,239}Np$, $^{239,240,241,243}Am$, and ^{245}Bk at proton energy $E_p = 10.3$ MeV.

Table 5. Relative contributions Y_i, average masses of heavy fragments $\bar{M}_{H,i}$, and mass dispersions $\sigma^2_{M,i}$ for distinct fission modes at proton energy E_p =10.3 MeV

Compound nucleus	Mode	Y_i %	$\bar{M}_{H,i}$ (amu)	$\sigma^2_{M,i}$ (amu^2)
^{233}Pa	S1	6.6	133.8	9.5
	S2	79.3	139.5	34
	S3	0.3	148.1	4
	S	13.8		154
^{234}Np	S1	8.0	133.2	14
	S2	65.9	137.9	47
	S3	0.8	147.9	11
	S	25.3		164
^{236}Np	S1	8.3	133.9	13
	S2	71.3	138.8	43
	S3	1.0	152.3	14
	S	19.4		167
^{237}Np	S1	8.7	133.9	11
	S2	74.7	139.3	43
	S3	0.6	153.4	9
	S	16		173
^{239}Np	S1	11.1	134.6	13
	S2	73.9	140.1	44
	S3	1.0	155.1	9
	S	14.0		169
^{239}Am	S1	5.4	134.0	18
	S2	69.5	139.0	49
	S3	1.9	154.1	15
	S	23.2		161
^{240}Am	S1	7.0	134.4	17
	S2	69.4	139.6	50
	S3	1.4	155.5	10
	S	22.2		156
^{241}Am	S1	6.3	134.7	16
	S2	71.3	140.0	50
	S3	1.8	155.9	12
	S	20.6		154
^{243}Am	S1	7.3	135.2	18
	S2	74.1	140.5	51
	S3	1.9	156.8	11
	S	16.7		169
^{245}Bk	S1	7.8	135.5	29
	S2	70.2	141.0	55
	S3	3.1	157.6	18
	S	18.9		174

Table 6. Relative contributions Y_i, average masses of heavy fragments $\bar{M}_{H,i}$, and mass dispersions $\sigma^2_{M,i}$ for distinct fission modes at proton energy E_p =22.0 MeV

Compound nucleus	Mode	Y_i %	$\bar{M}_{H,i}$ (amu)	$\sigma^2_{M,i}$ (amu^2)
^{233}Pa	S1	4.8	133.9	13
	S2	54.2	139.1	41
	S3	0.1	149.1	3
	S	40.9		169
^{234}Np	S1	5.3	134.3	23
	S2	39.5	137.6	56
	S3	1.1	150.4	12
	S	54.1		179
^{236}Np	S1	4.4	133.6	16
	S2	44.1	138.8	52
	S3	0.9	152.9	12
	S	50.6		195
^{237}Np	S1	6.1	134.5	19
	S2	51.8	139.0	53
	S3	0.9	152.7	13
	S	41.2		168
^{239}Np	S1	5.0	135.1	14
	S2	55.3	140.0	49
	S3	1.7	154.5	12
	S	38		170
^{240}Am	S1	2.5	133.6	16
	S2	51.1	138.5	60
	S3	2.7	155.5	15
	S	43.7		169
^{241}Am	S1	3.5	134.6	17
	S2	51.3	139.4	64
	S3	1.6	156.2	16
	S	43.6		194
^{243}Am	S1	3.4	134.6	16
	S2	56.3	140.4	60
	S3	1.9	157.8	17
	S	38.4		172

Table 7. Relative contributions Y_i, average masses of heavy fragments $\bar{M}_{H,i}$, and mass dispersions $\sigma^2_{M,i}$ for distinct fission modes from fission of ^{233}Pa

Compound nucleus	Mode	Y_i (%)	$\bar{M}_{H,i}$ (amu)	$\sigma^2_{M,i}$ (amu^2)
1	2	3	4	5
7.4	S1	10.3	133.8	12
	S2	75.8	140.0	42
	S3	0.6	151.7	9
	S	13.3		169
12.5	S1	8.5	133.9	12
	S2	69.7	139.5	38
	S3	0.5	148.2	7
	S	21.3		153
13.5	S1	6.1	133.4	12
	S2	69.1	139.2	39
	S3	0.3	147.6	6
	S	24.5		147
16.5	S1	4.2	134.0	11
	S2	68.7	139.7	38
	S3	0.2	148.5	5
	S	26.9		152
18.0	S1	4.5	133.8	13
	S2	64.8	139.4	40
	S3	0.3	147.6	5
	S	30.4		151
20.0	S1	4.4	133.5	11
	S2	59.7	139.1	42
	S3	0.3	148.2	7
	S	35.6		150
24.0	S1	4.7	134.1	12
	S2	56.0	139.1	44
	S3	0.2	147.7	7
	S	39.1		155
26.0	S1	4.0	133.7	12
	S2	55.7	139.2	43
	S3	0.2	147.2	5
	S	40.1		155
28.0	S1	5.0	133.8	17
	S2	50.6	139.4	46
	S3	0.1	149.4	3
	S	44.3		161
30.0	S1	4.8	133.8	16
	S2	49.2	139.4	46
	S3	0.2	148.7	4
	S	45.8		158

Table 8. Relative contributions Y_i, average masses of heavy fragments $\bar{M}_{H,i}$, and mass dispersions $\sigma^2_{M,i}$ for distinct fission modes from fission of ^{236}Np

Compound nucleus	Mode	Y_i %	$\bar{M}_{H,i}$ (amu)	$\sigma^2_{M,i}$ (amu^2)
7.4	S1	8.5	134.1	14
	S2	77.4	139.1	43
	S3	1.6	153.2	11
	S	12.5		197
12.5	S1	9.0	133.7	19
	S2	61.4	139.0	50
	S3	0.6	152.2	13
	S	29.0		175
13.5	S1	7.5	133.3	15
	S2	59.0	139.1	50
	S3	0.3	152.5	6
	S	33.2		178
15.0	S1	6.2	133.6	17
	S2	58.1	138.8	50
	S3	0.4	152.6	12
	S	35.3		174
16.5	S1	5.4	133.5	16
	S2	53.4	139.0	52
	S3	0.4	152.0	13
	S	40.8		180
18.0	S1	5.7	133.7	17
	S2	50.2	139.2	52
	S3	0.3	151.1	13
	S	43.8		184
28.0	S1	2.8	133.6	16
	S2	46.4	139.0	54
	S3	0.6	153.6	12
	S	50.2		156
30.0	S1	3.6	134.8	24
	S2	41.3	139.1	53
	S3	0.8	153.8	13
	S	54.3		170

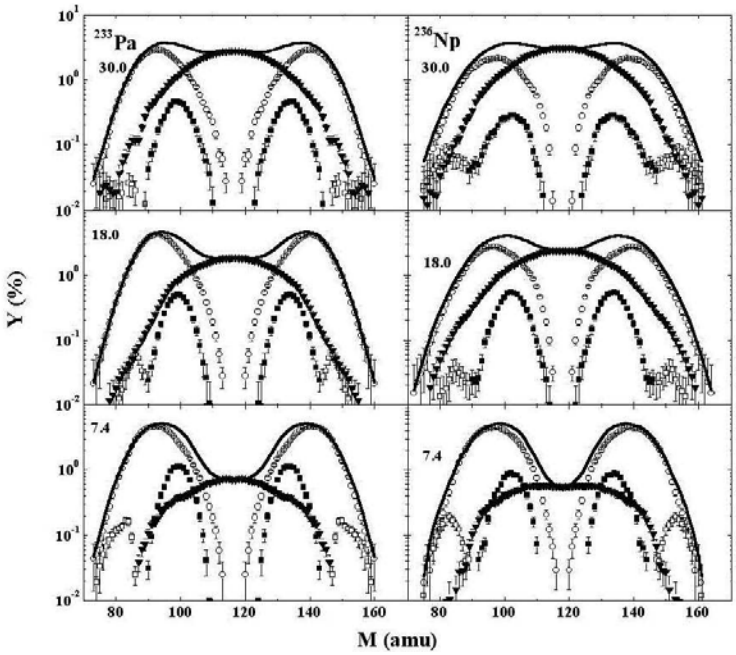


Figure 3. Results of the decomposition of fragment mass distributions from the fission of nuclei ^{233}Pa and ^{236}Np at proton energies E_p = 7.4, 18.0, and 30.0 MeV. Lines – experiment; extracted mass yields: solid square – S1, open circle – S2, : open square – S3, triangle – S.

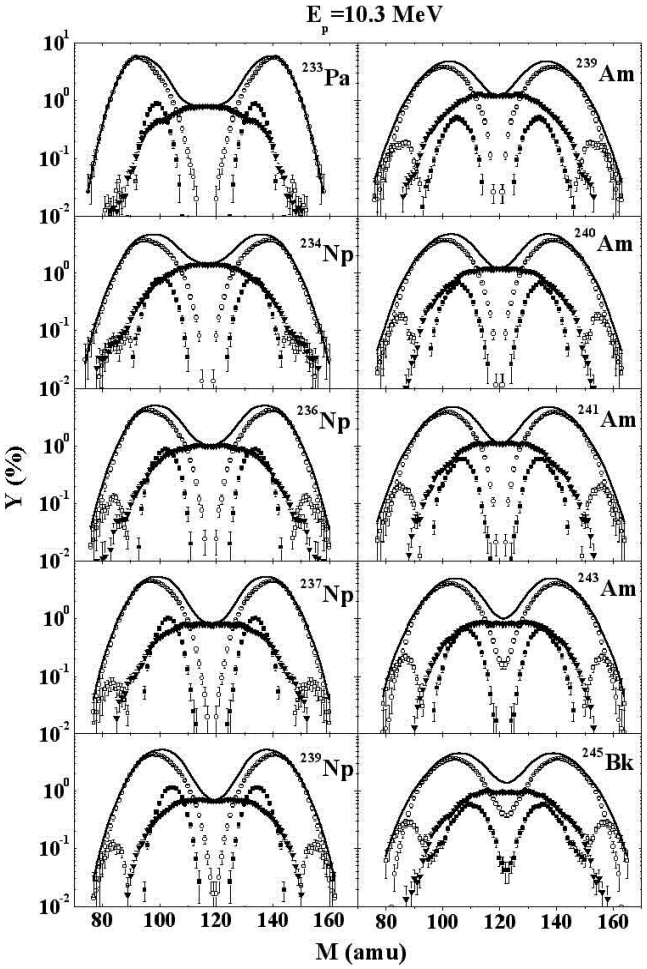


Figure 4. Results of the decomposition of fragment mass distributions from the fission of nuclei ^{233}Pa, ^{234,236,237,239}Np, ^{239,240,241,243}Am, and ^{245}Bk at proton energy E_p = 10.3 MeV. Designations are the same as in Fig. 3

4. DISCUSSION

4.1 Energy dependencies

The influence of the incident proton energy on the characteristics of fission modes was studied for two compound nuclei ^{233}Pa and ^{236}N in Figs.5 and 6.

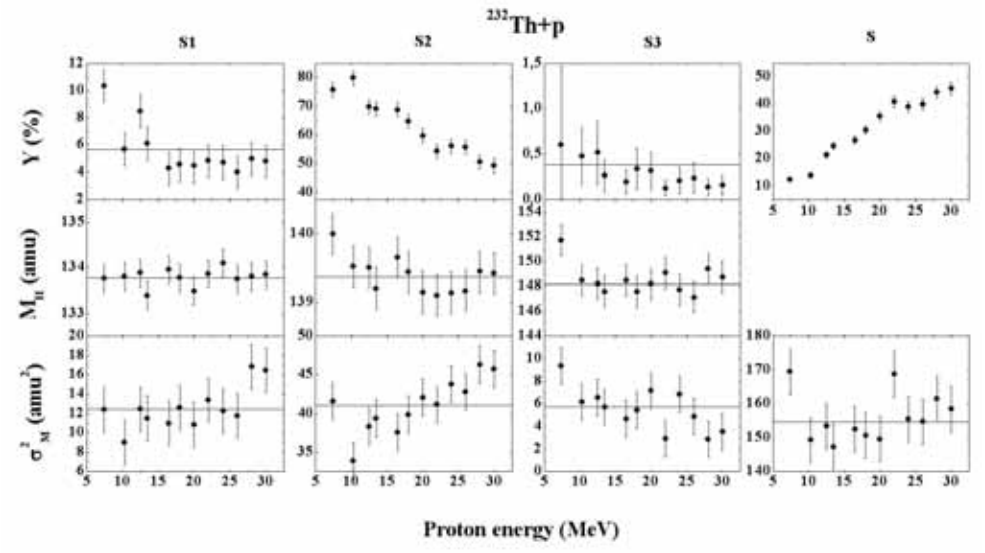


Figure 5. The relative contributions Y, average masses of heavy fragments M_H and mass variances σ^2_M of the independent modes from fission of target-nuclei ^{232}Th vs. incident proton energy

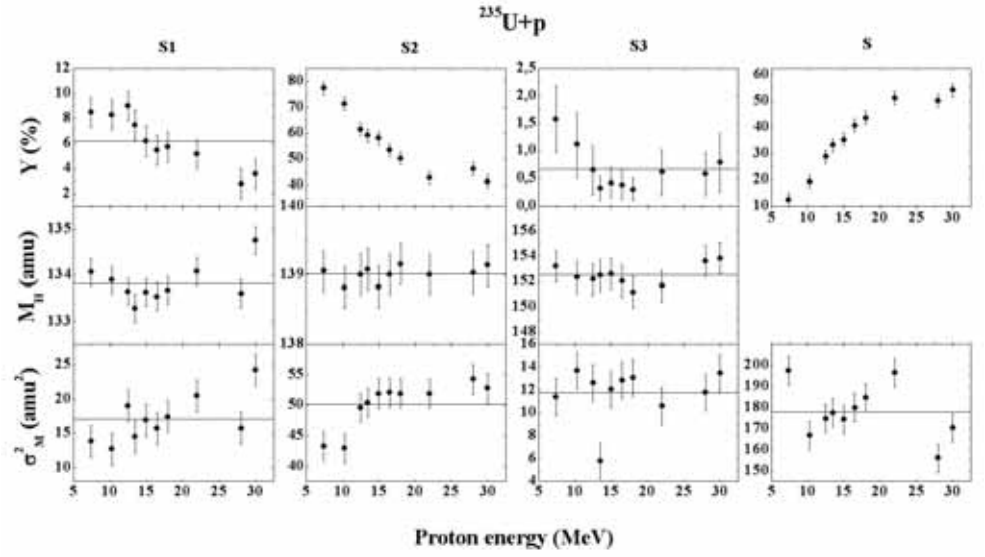


Figure 6. The relative contributions Y, average masses of heavy fragments M_H and mass variances σ^2_M of the independent modes from fission of target-nuclei ^{235}U vs. incident proton energy

Lines in Figs. 5 and 6 show the mean values of corresponding characteristics as a guidance for eye. One can see that in both cases the values Y_i for the asymmetric modes decrease with growth of proton energy in full accordance with well-known notions about the temperature re-arrangement of shell effects. At the same time, the values $<M_{H,i}>$ are practically *independent* on E_p.

The extracted values of $\sigma^2_{M,S}$ demonstrate rather complicate dependencies. It is quite possible that this picture could be explained by the influence of shell effects due to strongly deformed shell closures that causes the flattening of the symmetric MDs in the vicinity of masses close to A/2 seen in Figs. 3 and 4. On the other hand the uncertainties at the extraction of $Y_S(M)$ on the wings of these distributions, shown in these Figures are rather great that could cause additional scattering of the data. The contribution of mode S3 is very small and the uncertainties of extracted values of $\sigma^2_{M,S3}$ are rather great that does not allow to reveal reliably the character of this value dependence on proton energy. The values of $\sigma^2_{M,i}$ for main asymmetric modes S1 and S2 *slowly* grow with the increasing of the proton energy. This be-

havior is in accord with notions about the influence of fissile nucleus temperature on the mass yield width.

The revealed regularities, such as independence of $<M_{H,i}>$ on incident particle energy and rather slow growth of $\sigma^2_{M,i}$ for modes S1 and S2, open favorable opportunities for developing simple systematics of the fission yields for actinide nuclei.

4.2 Nucleon composition dependencies

The contributions Y_i, average heavy fragment masses $M_{H,i}$ and variances of mass yields $\sigma^2_{M,i}$ of the most intensive fission modes S1, S2, and S for all studied compound nuclei formed in the reactions with protons at E_p = 10.3 MeV are performed in Fig. 7.

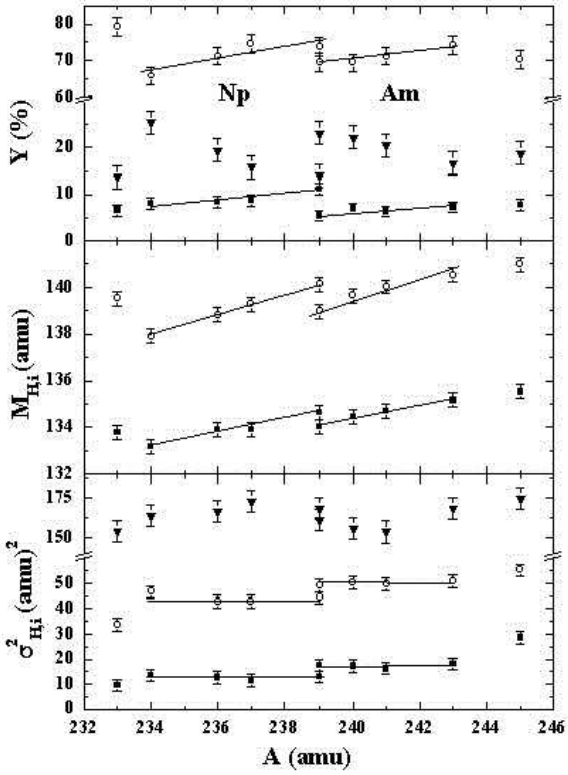


Figure 7. The contributions Y_i, average heavy fragment masses $M_{H,i}$ and dispersions of mass yields $\sigma^2_{M,i}$ for modes S1, S2, and S versus compound masses A at E_p = 10.3 MeV. Designations are the same as in Fig. 3. Lines are shown for a guidance of eye

This Figure allows to observe the features of the behavior of the characteristics of asymmetric modes S1 and S2 for Np and Am isotopic chains against a background of the general trends of the presented A-dependencies. One can see that while for the valueY_{S1} the general trend is a characteristic of staying constant, and for mode S2 this trend demonstrates the weak decrease of Y_{S2} with growth of A, the isotopic dependencies are clearly growing. For the values M_H of these asymmetric modes both general and isotopic trends demonstrate the growth with the increase of A, but the difference in slopes is rather visible. As for $\sigma^2_{M,S1}$ and $\sigma^2_{M,S2}$ one can observe the practical independence of these values on A inside isotopic chains and their growth in general dependencies.

The observed difference of isotopic and general trends in A-dependencies of both predominant modes S1 and S2 may indicate the different roles played by the proton and neutron components of nucleon composition in the actinide nucleus fission fragment mass yields formation. The more clear visual demonstration of this difference is performed in Fig. 8, where the average proton Z_F and neutron numbers N_F of light fragment group for the modes S1 and S2 are presented in the dependence on A. Here and below, these numbers were calculated assuming the unchanged charge density $Z_F = M^*(Z_{CN}/A)$ and $N_F = M^*(N_{CN}/A)$.

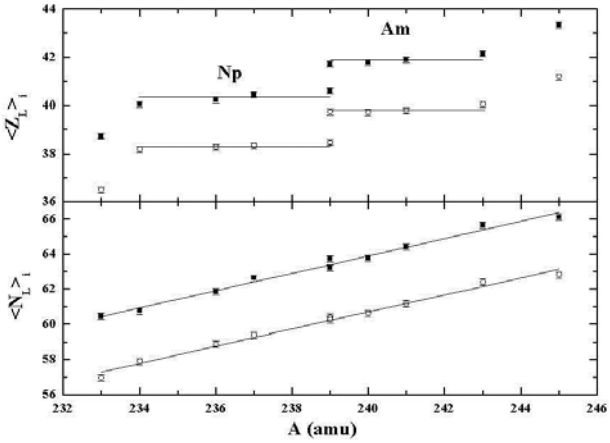


Figure 8. The average proton $<Z_L>_i$ and neutron $<N_L>_i$ numbers of light fragment group for modes S1 and S2 in the dependence of A. Closed square – S1, opened circle – S2

In the upper part of Fig. 8 the lines show the proton numbers averaged over the Np and Am isotopic chains. It is clearly seen that inside one isotopic chain the values $<Z_L>_{S1}$ and $<Z_L>_{S2}$ stay practically constant. In the lower part the lines demonstrate the results of the linear fitting of whole totalities of the data as general trends and significant deviations of the isotopic dependencies from these lines are not revealed. The standard deviations of $<N_L>_i$ from these lines do not exceed ~ 0.2. Naturally, the picture of the fragment nucleon composition of light fragments reflects that of heavy ones and one can certainly conclude that average proton numbers of the modes S1 and S2 inside the isotopic chains are more stable that neutron ones.

The virtual conservation of peak positions $<Z_{peak}>$ inside the isotopic chain for two main asymmetric fission modes and the practical independence of their width on A allow to expect that the sum asymmetric distributions $Y_A(Z) = \Sigma\ Y_i(Z)$ (i = S1, S2, and S3) for nuclei from one isotopic chain will be similar. Since the total contribution of asymmetric fission exceeds 80 % the grouping effect for Y(Z) from fission of nuclei belonged to one isotopic chain could be observed directly in experimental distributions without any preliminary decomposition.

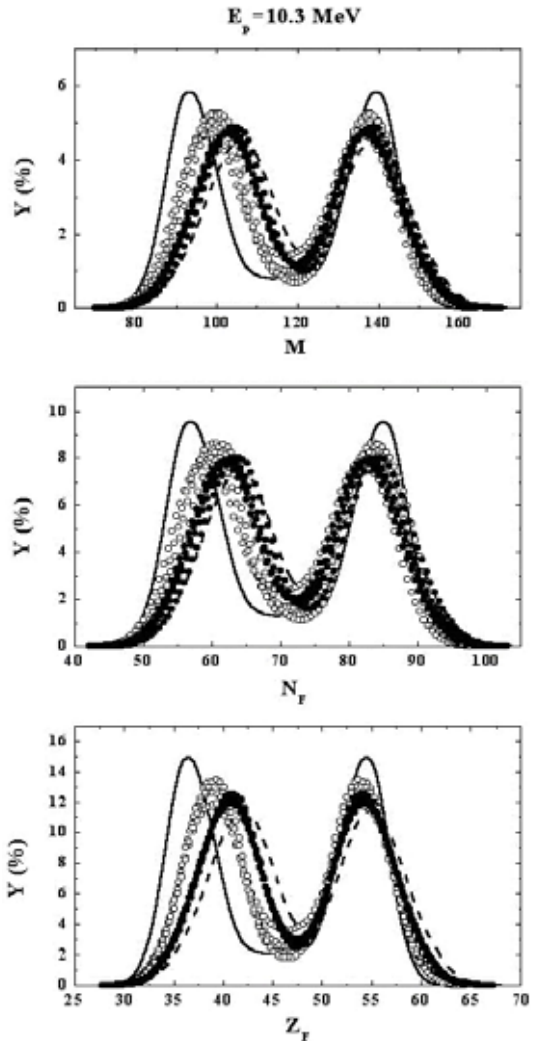


Figure 9. The fragment mass yields Y(M), charge $Y(Z_F)$ and neutron number $Y(N_F)$ distributions from fission of compound nuclei from ^{233}Pa to ^{245}Bk at E_p = 10.3 MeV. Solid lines – ^{233}Pa, open circles – ^{234,236,237,239}Np, solid squares – ^{239,240,241,243}Am, dash lines – ^{245}Bk

Fig. 9 performs the experimental relative fragment yields in their dependence on M, N_F, and Z_F of fragments. According to the well-known notions about asymmetric fission of actinides, the positions of heavy fragment peaks of the mass yields stay practically constant with the change of A. So, the virtual coincidence of the yields in the heavy fragment group for all actinide nuclei makes it difficult to observe the details of the isotopic dependencies in this part of the distributions. But for the light fragments, the isotopic grouping of yield curves at the slopes of asymmetric fission are noticeable even in Y(M). In $Y(N_F)$ the isotopic grouping is not observed, but in $Y(Z_F)$ the existence of such groups is obvious. The visible distinctions of the $Y(Z_F)$ curves inside the Np and Am isotopic chains are observed only in the limited regions close to the peak tops and the center of this distributions that may be conditioned by the competition between symmetric and asymmetric fission modes.

The conclusion about the strong grouping of charged yields of nuclei constituting an isotopic chain agrees to the direct experimental data on the charge distributions of nuclei from the Pa isotopic chain measured at the electromagnetic excitation of relativistic nuclei in Pb target [30,31]. This is clearly seen from the Fig. 10, where the data for the four heaviest isotopes of Pa with the least contribution of the symmetric fission are presented.

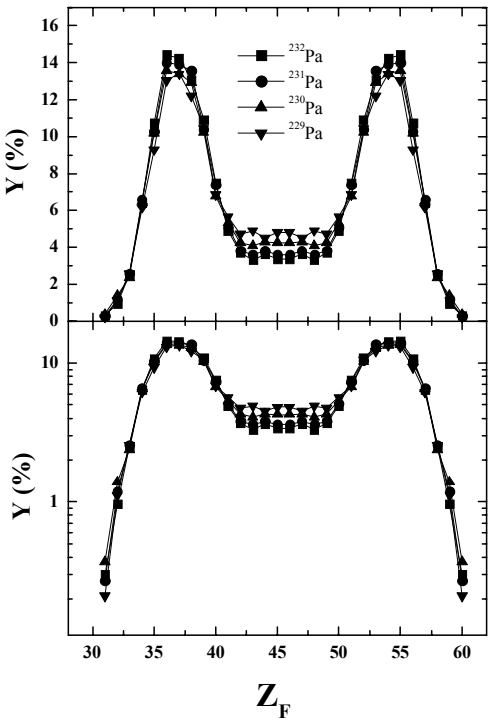


Figure 10. The fission fragment charge distributions $Y(Z_F)$ for nuclei ^{229,230,231,232}Pa from Refs. [30,31]

One can see that the main features of these curves coincide with those from Z-representation in Fig. 6. The strong grouping of the yields at slopes of asymmetric fission is obviously seen and the visible difference of these curves is observed only near the tops of light and heavy fragment peaks.

One can see that the main features of our UCD charge distributions in Fig. 9 and measured fragment charge yields in Fig. 10, such as strong grouping of the curves for isotopes at their slopes, look similar. Incidentally, this result argues in favour of appropriateness of the approximations used (non-emissive fission and UCD). The decomposition of the experimental fragment charge yields into symmetric and asymmetric fission components made by the authors of Refs. [30,31] showed that the positions of the heavy-fragment asymmetric peaks stay constant ($Z_{FH} \approx 54$) not only for all nuclei from the Pa chain, but also for the isotopic chains of U and Th.

The features of the yields shapes in the asymmetric fission are presented in detail in Figs. 11 and 12, where the symmetric mode yields are subtracted and the asymmetric fission yields $Y_a(Z_F)$ and $Y_a(N_F)$ at Ep = 10.3 and 22.0 MeV are performed in the linear and logarithmic scales.

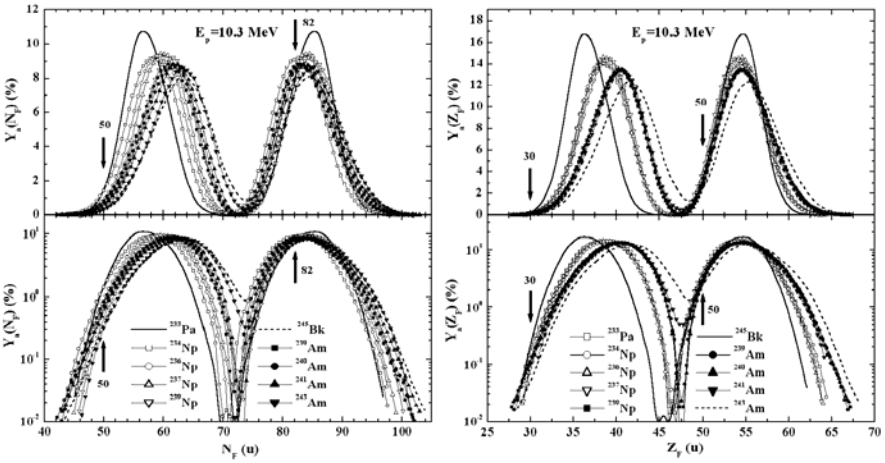


Figure 11. The UCD charge $Y(Z_F)$ and neutron number $Y(N_F)$ distributions from asymmetric fission of compound nuclei from ^{233}Pa to ^{245}Bk at E_p = 10.3 MeV.

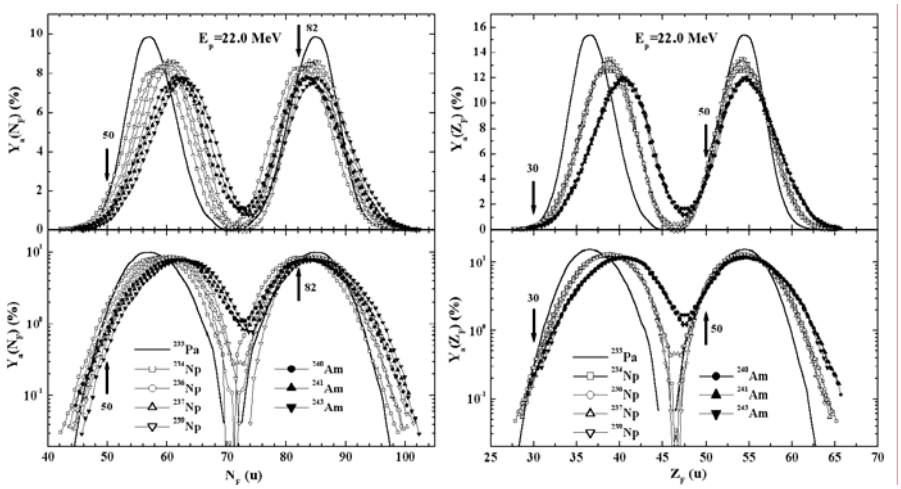


Figure 12. The UCD charge $Y(Z_F)$ and neutron number $Y(N_F)$ distributions from asymmetric fission of compound nuclei from ^{234}Np to ^{243}Am at E_p = 22.0 MeV.

It is clearly seen that the $Y_a(Z_F)$ curves for all studied nuclei virtually coincide for both light fragments with $Z_F \approx 30$ that is rather close to magic number N = 28 and for heavy fragments with $Z_F \approx 50$ (see arrows). Roughly speaking, the mass distributions for actinide nuclei are packed between fragments with $Z_{FL} \approx 28$ and $Z_{FH} \approx 50$, and, therefore, the widths of these distributions are mainly defined by the value $\Delta Z \sim Z_{CN} - 50 - 28$, almost independently on N_{CN}. Recently the global yield grouping effect was revealed in Refs. [32,33] for Y(M) in the actinide nuclei thermal neutron induced fission. In those works this effect was interpreted as a manifestation of the determinative influence of spherical shell closures formed in light and heavy fragments on the wings of the fragment mass yields.

Besides, in both these Figs. the $Y_a(Z_F)$ curves for isotopes from the Np and Am chains coincide with a good accuracy in a whole range of Z_F. Contrary to the global and isotopic grouping effects clearly seen in $Y_a(Z_F)$, the curves $Y_a(N_F)$ do not demonstrate any visible coincidences of the yield values, including the vicinities of magic neutron numbers 50 and 82 marked in these Figs. with arrows.

In more details the difference of the influence of fragment proton and neutron numbers on shapes of $Y_a(Z_F)$ and $Y_a(N_F)$ is shown in Fig. 13, where these yields from fission of ^{237,239}Np and ^{239,241}Am at E_p = 10.3 MeV are presented. This set of compound nuclei consists of two isotopic (Z_{CN} = 93,95) and two isotonic (N_{CN} = 144,146) pairs. Whereas the charge yields inside both isotopic pairs practically coincide in a whole range of fragment proton numbers, the curves $Y_a(N_F)$ for both these isotonic pairs coincide only in narrow vicinities of neutron numbers 52 and 82. In other areas of fragment neutron numbers the difference of the yields is rather essential, including the vicinity of N = 88 (arrows). As it was mentioned above, the deformed neutron shell 88 is usually involved in attempts to explain the properties of predominant asymmetric mode S2. But, if that is the case, one could expect to see some stabilizing influence of this shell on the positions and/or shapes of the heavy fragment asymmetric distributions, at least for nuclei with equal N_{CN}. Instead, we observe very strong stabilizing effects in $Y_a(Z_F)$ for nuclei with equal Z_{CN}.

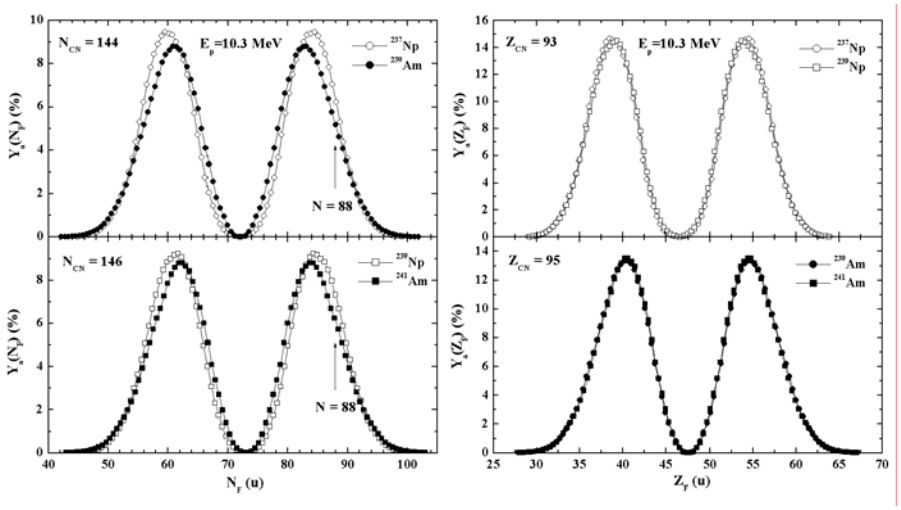


Figure 13. The UCD asymmetric fission yields $Y(Z_F)$ and $Y(N_F)$ for nuclei $^{237,239}Np$ and $^{239,241}Am$

5. SYSTEMATICS OF FRAGMENT MASS YIELDS

5.1 Background

The investigation of properties of asymmetric fission modes allowed to establish that the UCD charge distributions for asymmetric fission as a whole $Y_a(Z_F) = \Sigma Y_i(Z_F)$ (i= S1,S2,S3) practically coincide for all nuclei belonged to one isotopic chain. So, in our opinion, it is possible to describe the relative fragment mass yields in the framework of *two-modal* (symmetric and asymmetric) approximation and, consequently, to simplify significantly the required systematics due to decrease of a number of necessary description parameters.

From Figs. 3 and 4 one can see that, generally speaking, the shapes of $Y_S(M)$ and $Y_a(M)$ are not Gaussians, and for description of both modes the Charlier's peak function could be used. However, as for $Y_S(M)$ the deviations from Gaussian shapes are observed only at relatively low energies of incident protons when the total contribution Y_S is rather small. As it was mentioned above these deviations may be conditioned by either the influence of strongly deformed shells on the mode S analogously to the effect observed in Ref. [34] or uncertainties of the modal decomposition. At higher particle energy, when Y_S increases the deviations decrease and the shape of $Y_S(M)$ becomes close to Gaussian one. Proceeding from this it was decided to use the Charlier's peak function only for $Y_a(M)$ and to describe $Y_S(M)$ with Gaussian distribution in the whole range of incident particle energies.

So, at $M \geq A/2$ the fragment mass yields could be described as:

$$Y(M) = (2\pi)^{-1/2}((Y_S/\sigma_S)\exp(-u_S^2/2) + (Y_a/\sigma_a)\exp(-u_a^2/2)(1 - \gamma_1(3u_a - u_a^3)/6 + \gamma_2(u_a^4 - 6u_a^2 + 3)/24)),$$
$$u_S = (M - A/2)/\sigma_S \text{ and } u_a = (M - M_a)/\sigma_a, \quad (11)$$

where Y_S and Y_a - are total contributions of symmetric and asymmetric modes, M_a - is an average mass of asymmetric modes, σ_S and σ_a - are the variances for symmetric and asymmetric modes, γ_1 and γ_2 - are coefficient of dissymmetry and excess for asymmetric mode.

At $M < A/2$ $Y(M)=Y(A-M)$ that allows to avoid the overlapping of asymmetric peaks in the vicinity of A/2.

The applicability of the two-modal description is demonstrated in Fig. 14, where experimental Y(M) at E_p = 10.3 and 22.0 MeV, results of the modal decomposition $Y_S(M)$ and $Y_a(M)$, and their description according to Eq. (11) are shown. One can see that whatever the case of the deviations of $Y_S(M)$ from Gaussian shape, this shortcoming of our $Y_S(M)$-parametrization does not decrease significantly the quality of the experimental Y(M) description. The Charlier's parametrization of $Y_a(M)$ proved to be able to reproduce all main features of the mass yields for asymmetric fission as a whole. Some deviations of the $Y_{a,des}(M)$ from extracted values of $Y_a(M)$ observed in the vicinity of the peaks at the lower proton energy compensates the shortage of $Y_{S,des}(M)$.

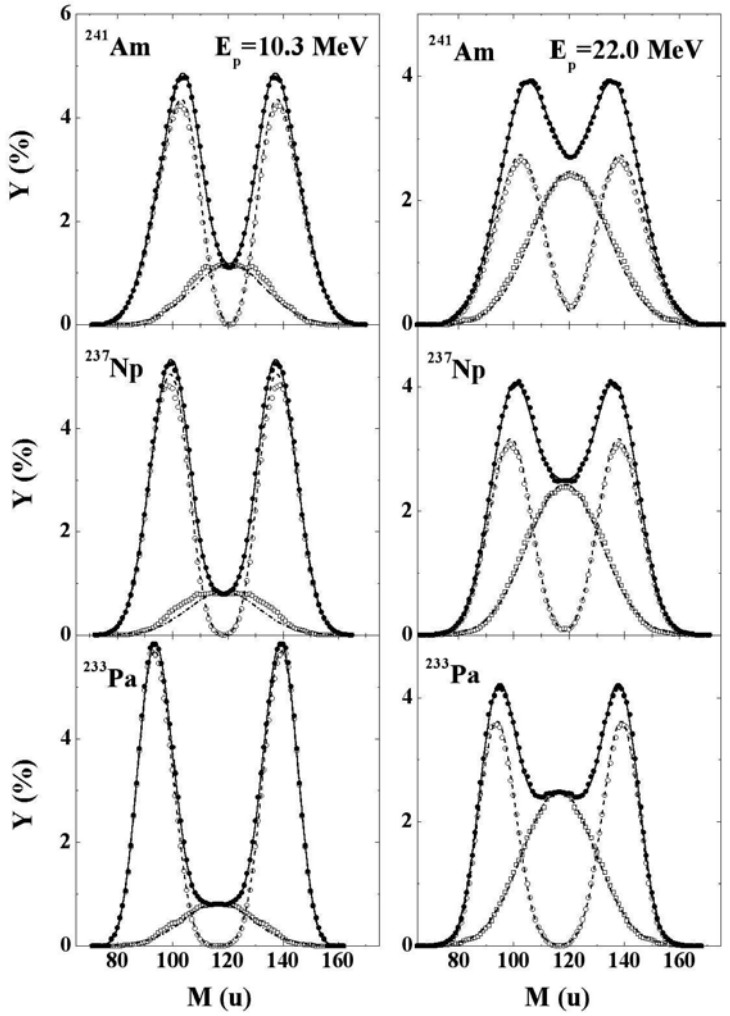


Figure 14. Experimental Y(M) (solid circles), $Y_a(M)$ (open circles) and $Y_S(M)$ (open squares) from the modal decomposition, and their description $Y_{des}(M)$ (solid lines), $Y_{a,des}(M)$ (dash lines) and $Y_{S,des}(M)$ (dash-dot lines).

So, *the proposed two-modal parametrization is applicable to developing the fragment mass yield systematics* that, in this case, is determined by 6 description parameters: Y_a/Y_S, M_a, σ_a, σ_S, γ_1, and γ_2 in their dependence on nucleon composition of compound nuclei and incident particle energy.

5.1 Description parameters

The calculation of value M_a for given compound nuclei and particle energy is based on following consideration. As it was mentioned above this value is practically independent on proton energy, so $M_a = M_a(Z_{CN},A)$. In Fig. 15 the values $M_{H,a}/Z_{CN}$ at Ep = 10.3 and 22.0 MeV are shown in dependence on $(Z_{CN})^2/A$ of compound nuclei. One can see that the behaviour of experimental points could be approximated by a linear function, and, therefore

$$M_{H,a} = a_M A/Z_{CN} + b_M Z_{CN}, \qquad (12)$$

where a_M and b_M - are parameters of the systematics.

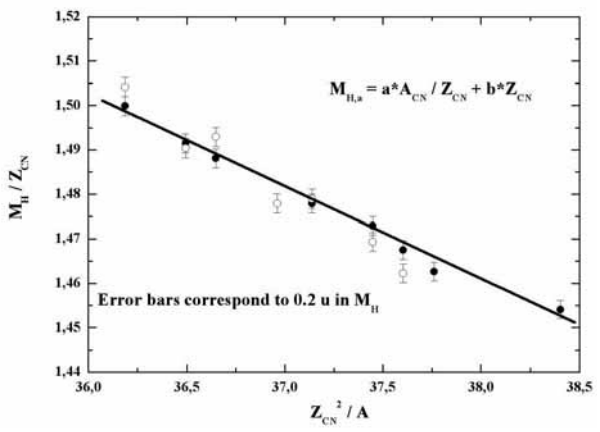


Figure 15. The ratio of average masses of heavy fragments from asymmetric fission to atomic numbers of compound nuclei M_H/Z_{CN}.

The data on σ_a for the 10.3 and 22.0 MeV protons are performed in Fig. 16 in the dependence on A (left part)and Z_{CN} (right part). One can see that for both proton energies the value σ_a is linearly dependent on Z_{CN}. But inside one isotopic chain the value σ_a is practically independent on A. Such behaviour of this value reflects the fact that curves $Y_a(Z_F)$ for isotopes practically coincide. At this, the difference in average σ_a for neighbouring isotopic chains (lines in left part of this Figure) increases with growth of proton energy. So, we suppose that σ_a is mainly dependent on Z_{CN} and $E^* = Q_R + E_{part}A_t/A$, ($A_t$ – the target-nucleus mass) and the following function could be used:

$$\sigma_a = A/Z_{CN}(Z_{CN}-a_a)(b_a+c_a(E^*)^{0.25}), \qquad (13)$$

where a_a, b_a and c_a - are parameters of the systematics.

Unfortunately, we did not succeed to find γ_1- and γ_2-parametrization function simple enough, but since these values are mainly dependent on Z_{CN} and a set of Z_{CN} = 90–98, which is of interest for practical application, is rather narrow, we have determined them for every Z_{CN} from this range (see Table 9).

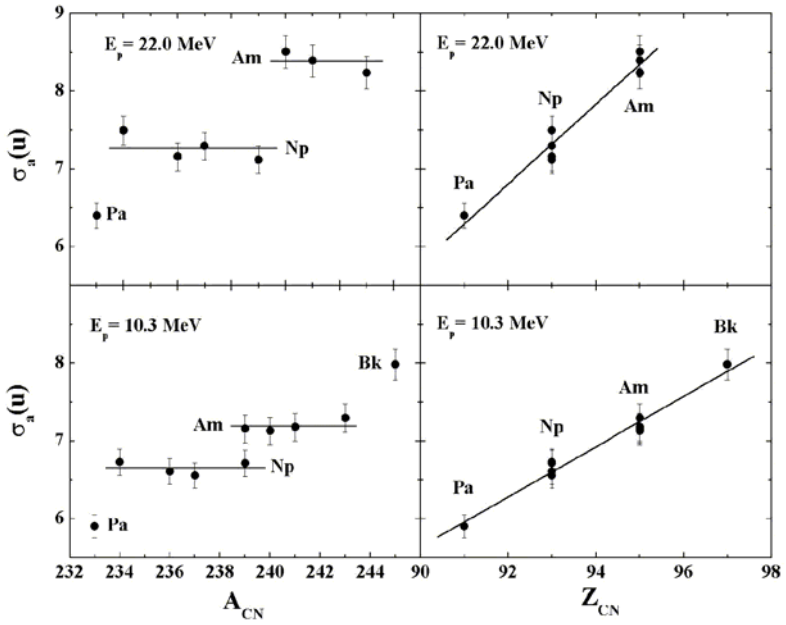


Figure 16. The asymmetric fission mass yield variance σ_a versus A and Z_{CN} at E_p = 10.3 and 22.0 MeV.

Table 9. Values of γ1 and γ2 for diffenrent Z_{CN}

Value	Z_{CN}								
	90	91	92	93	94	95	96	97	98
γ_1	0	-0.08	0.36	0.23	0.3	0.38	0.34	0.29	0.0
γ_2	-0.36	-0.07	-0.34	-0.27	-0.3	-0.34	-0.25	-0.15	0.0

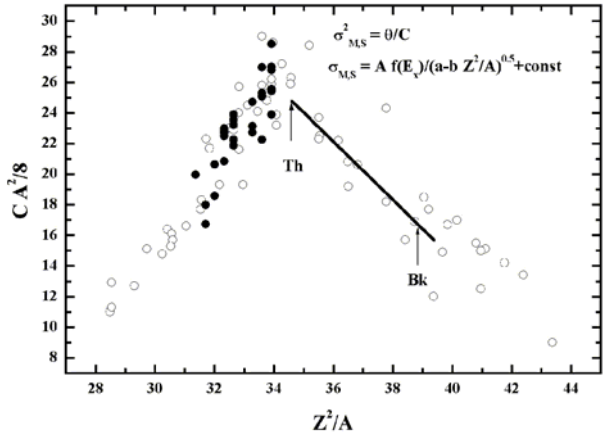


Figure 17. Experimental values C A^2/8 and their linear parametrization for nuclei from Th to Bk. Close circles – Ref. [34], open circles – Ref. [35]

The value σ_S was parametrized on the basis of well-known equation: $\sigma^2_S = \theta/C$, where θ is the fissioning nuclei temperature and C is the stiffness with respect to mass-asymmetric deformations.

Fig. 17 presents experimental values C in dependence on Z_{CN}^2/A. In the range from Th to Bk the values C can be approximated as linear function. Then

$$\sigma_S = A\ f(E^*)/(a_s - b_s\ Z_{CN}^2/A) + c_s\ , \qquad (14)$$

where a_a, b_a and c_a - are the systematic parameters.

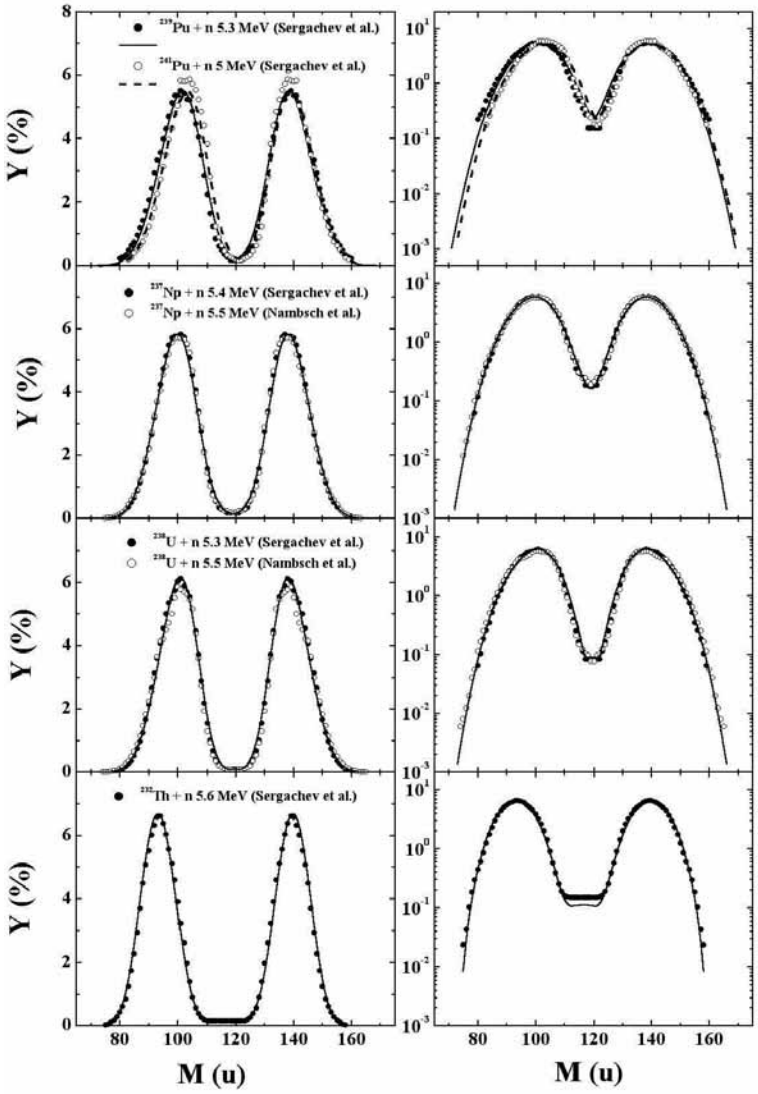


Figure 18. Experimental mass yields (circles) from neutron-induced fission at $E_n \approx 5$ MeV (Refs. [36,38-42]) and their description within the systematics (lines) in linear and logarithmic scales

The systematics parameters from Eqs. (12)-(14) and dependencies of Y_S/Y_a on Z_{CN}, A and E* for proton- and neutron induced fission have been determined by fit to experimental data from present work and Refs. [37-44]. It was obtained that the functions Y_S/Y_a for protons and neutrons are different, and finally the systematics equations are:

$M_{H,a} = 28.6(A/Z_{CN}) + 0.708\ Z_{CN}$ at $Z_{CN} \geq 92$;

$M_{H,a} = 54A/\ Z_{CN}$ at Z_{CN} =90, 91;

$\sigma_a = (A/Z_{CN})(Z_{CN} - 73)(0.074 + 0.0296(E^*)^{0.25})$;

$\sigma_S = 0.031A(E^*)^{0.25}/(90.54 - 1.9(Z_{CN}^2/A))^{0.5} + 9.64$;

$\gamma 1$ and $\gamma 2$ from Table 9;

$Y_S/Y_a = 1.244(E^*)^{0.25}(1-\exp(-0.0027(E^*-5.7)^{1.5}))(1+100/(E^*)^{0.5}(Z_{CN}/A-0.4))$ for neutrons with E_n = 5-200 MeV;

$Y_S/Y_a = 1.18((E^*-5.7)^{0.25}(1-\exp(-0.011(E^*-5.7)^{1.5}))-0.101)(1+2500/E^*(Z_{CN}/A-0.393))$ for protons with E_p = 5–200 MeV;

$Y_a = 200/(Y_S/Y_a+2)$; $Y_S = 200-2Y_a$;

The results of Y(M) calculations according to the systematics and experimental mass yields are compared in Figs. 18 – 20.

From this Figures one can see that this systematics reproduces main features of the experimental data and could be used as a basis for the calculations of fission product yields in reaction with neutrons in energy range 5–200 MeV in the interests of transmutation of minor actinides.

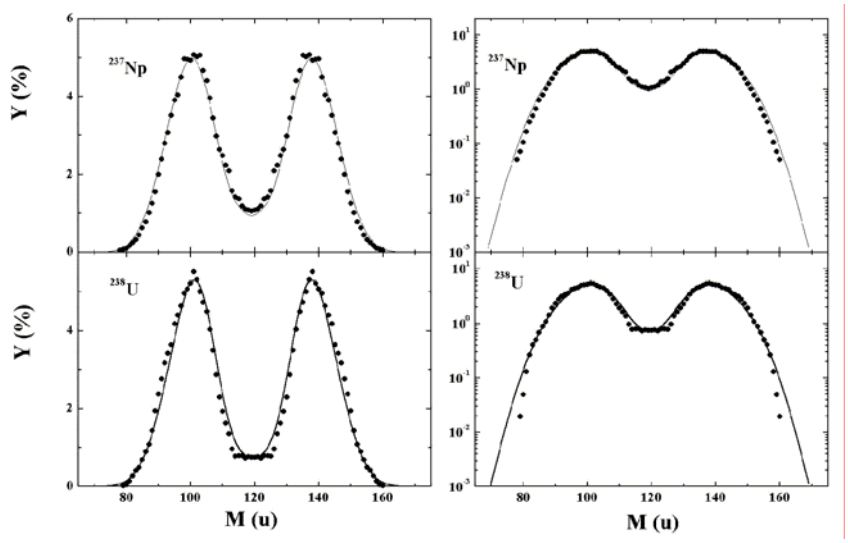


Figure 19. Experimental mass yields (circles) from neutron-induced fission at E_n = 16.5 MeV (Ref. [43]) and their description within the systematics (lines) in linear and logarithmic scales

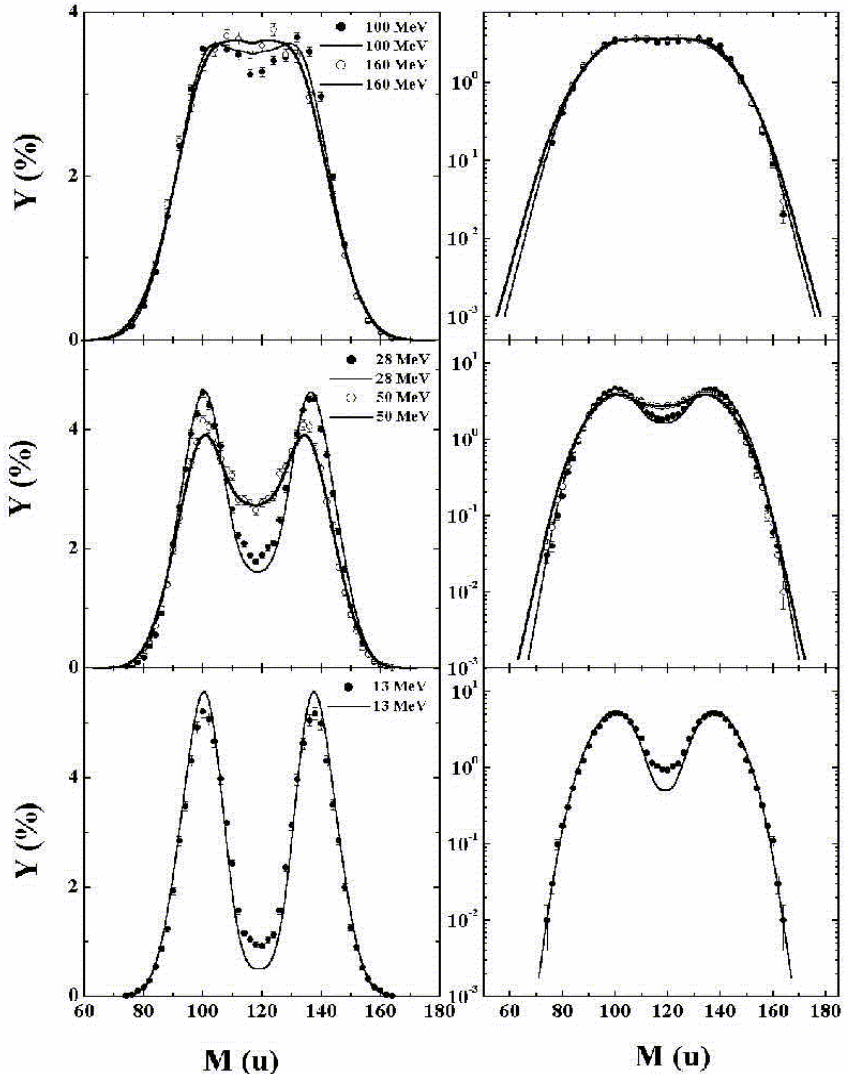


Figure 20. Experimental mass yields (circles) from neutron-induced fission at E_n = 13 – 160 MeV (Ref. [44]) and their description within the systematics (lines) in linear and logarithmic scales

6. CODE PYF

The systematics has been realized as the computer code PYF allowing to calculate the pre- and post neutron emission fragment mass yields from fission of target nuclei from Th to Bk in reactions with protons and neutrons at kinetic energies from 5 to 200 MeV.

The data on numbers of emitted prompt neutrons are calculated with the post-fission neutron number systematics from Ref. [45].

Fig. 21 presents the user's window of the code, in which the initial data on desired reaction are defined, as well as calculation results and a name of output file are shown.

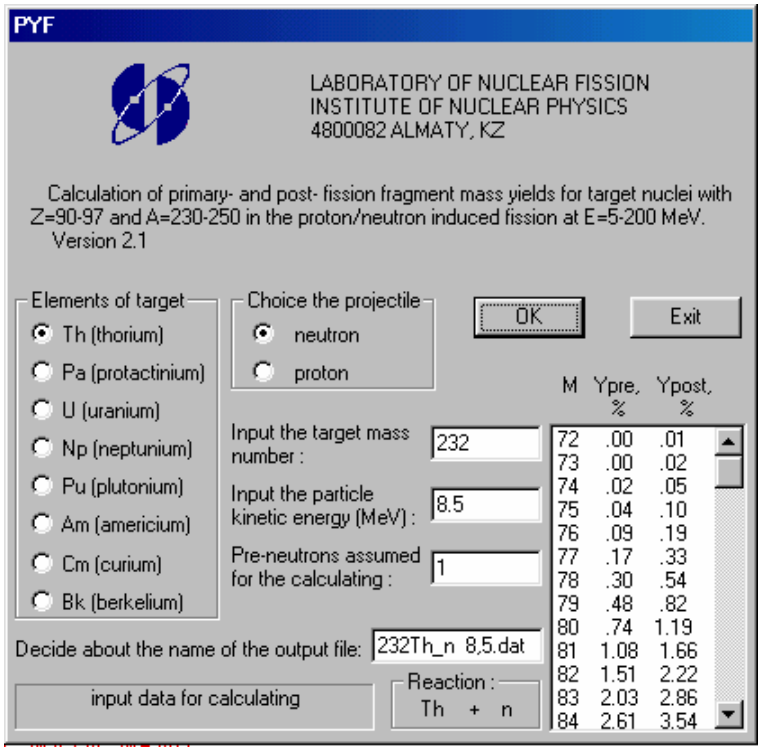


Figure 21. The user's window of the code PYF

The choice of a target nucleus and sort of incident particle is accomplished by clicking in corresponding circles. The target nucleus mass and particle energy are determined by hand.

The number of pre-fission neutrons are calculated automatically as:

$$\nu_{pre} = INT(0.3(E^* - 6 - B_n)^{0.6} + 0.5),$$

where INT - is the FORTRAN integer-value process operator, B_n - is neutron emission barrier.

A user also can determine the value of ν_{pre} by hand according any to other assumptions. The only program limitation on ν_{pre} is that the value must be integer.

The calculation results are presented in the scrollable part of the window and in the graphics window (Fig. 22) appearing at the screen automatically after the button OK is pressed.

This results are written in output file, which name is composed automatically at defining the required reaction parameters.

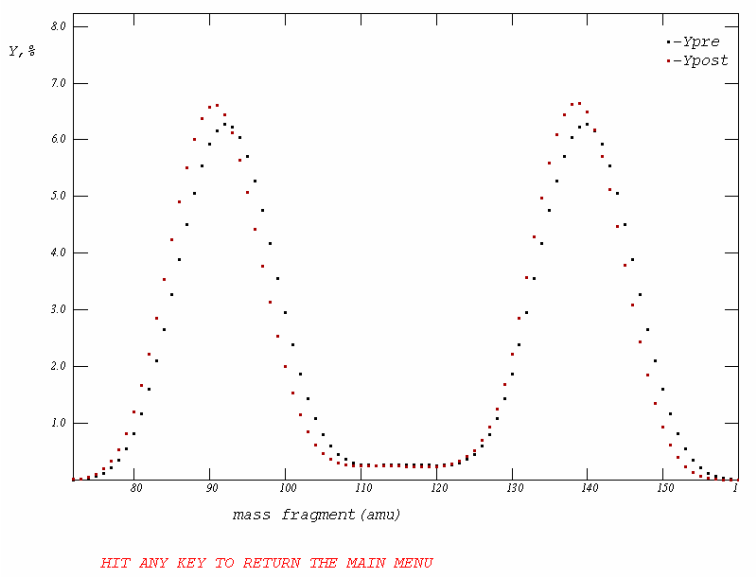


Figure 22. An example of the calculation results for the reaction defined in Fig. 21

7. CONCLUSIONS

The mass and energy distribution (MED) in the proton induced fission of compound nuclei ^{234,236,237,239}Np, ^{239,240,241,243}Am, ^{245}Bk at proton energy E_p = 10.3 MeV; ^{234,236,237,239}Np, ^{240,241,243}Am at proton energy E_p = 22.0 MeV; ^{233}Pa and ^{236}Np at E_p = 7.4 – 30.0 MeV have been measured by the spectrometry of coincident fission fragments with surface-barrier detectors.

The experimental information obtained have been analyzed in the framework of a new-developed method of multicomponent analysis, which is free from any assumptions about the shapes of the mass distributions of distinct modes.

The results of the analysis allowed to study the basic characteristics of distinct modes in their dependence on the incident particle kinetic energy and nucleonic composition of fissioning system.

Revealed regularities in the behavior of fission modes have been used for developing a new systematics of the pre- and post neutron emission fragment mass yields from fission of target nuclei from Th to Bk in reactions with protons and neutrons at kinetic energies from 5 to 200 MeV. This systematics reproduces main features of the experimental data and could be used as a basis for the calculations of fission product yields in reaction with neutrons in energy range 5–200 MeV in the interests of transmutation of minor actinides.

The systematics has been realized as the computer code PYF.

REFERENCES

1. Gönnenwien, F., in The Nuclear Fission Process, ed. C. Wagemans (CRC Press, Boca Raton, USA, 1991) p. 287.
2. Turkevich, A., Niday, J.B., Phys. Rev. 84 (1951) 52.
3. Pashkevich, V.V., Nucl. Phys. A169 (1971) 175.
4. Brosa, U., Grossmann, S., Müller, A., Phys. Reports, 197 (1990) 167.
5. Wilkins, B.D., et al., Phys. Rev. C14 (1976) 1832.
6. Mulgin, S.I., et al., Phys. Lett., B 462 (1999) 29.
7. Zöller, C.M., in Proceedings of "Seminar on Fission", Pont d'Oye III Castle, Belgium, ed. C. Wagemans, 1995, 56.
8. Kondratiev, N.A., et al., Sov J.: Pribory i Tekhnika Experimenta, 2 (1990) 62 (in Russian).
9. Henshel, H., et al., Nucl. Instr. Methods, 125 (1975) 365
10. Schmitt, H.W., et al., Phys. Rev., B4 (1965) 837.
11. Kaufman, S.B., et al., Nucl. Instr. Methods, 115 (1974) 47.
12. Mulgin, S.I., et al., Nucl. Instr. Methods, A 388 (1997) 254.
13. Gavron A., Nucl. Instr. Methods, 115 (1974) 93.
14. Schmitt, H.W., et. al., Phys. Rev., 141 (1966) 1146.
15. Plasil, F., et. al., Phys. Rev., 142 (1966) 696.
16. Strecker, M., et al., Phys. Rev., C 41 (1990) 2172.
17. Straede, C.H., et al., Nucl. Phys., A 462 (1987) 85.
18. Piessens, M., et al., Nucl. Phys., A 556 (1993) 88.
19. Beizin, S.D., et al., Sov. J. Nucl. Phys., 53 (1991) 411.
20. Steiper, E., et al., Nucl. Phys., A 563 (1993) 282.
21. Wagemans, C., et al., Nucl. Phys., A 502 (1989) 283c.
22. Schillebeeckx, P., et al., Nucl. Phys., A 545 (1992) 623.

23. Dematte, L., et al., Nucl. Phys., A 617 (1997) 331.
24. Goverdovski, A.A., Mitrofanov, V.F., Phys. At. Nucl., 60 (1997) 1787.
25. Pokrovsky, I.V., et al., Phys. Rev. C62 (2000) 014615.
26. Zhdanov, S.V., Sov. J. Nucl. Phys., 55 (1992) 175.
27. Zhdanov, S.V., Phys. At. Nucl.., 56 (1993) 1766.
28. Nix, J.R., Swiatecki, W.J., Nucl. Phys., 71 (1965) 1.
29. Cern Computer 6600 series program Library Long-Write-Up MINUIT.
30. Schmidt, K.-H., et al., Nucl. Phys. A 665 (2000) 221.
31. Böckstiegel, C., Bestimmung der totalen kinetischen Energien in der Niederenergiespaltung neutronenarmer radioaktiver Isotope, Dissertation 98-05, Techn. Univer., Darmstadt (1998).
32. Gönnenwien, F., in: Proc. Int. Conference Nuclear Shells – 50 Years, Dubna, Russia, april 1999 (World Scientific, Singapore, 2000) p. 76.
33. Tsekhanovich, I., et al., Nucl. Phys. A 688 (2001) 633.
34. Mulgin, S.I., et al., Nucl Phys. A 640 (1998) 375.
35. Rusanov, A.Ya., et al., Phys. At. Nucl. 60 (1997) 683.
36. Hambsch, F.-J. et al., Nucl. Phys. A 679 (2000) 3.
37. Gorodisskiy, D.M. et al., Phys. Lett. B 548 (2002) 45.
38. Sergachev, A.I., et al., Yad. Fiz. 7 (1967) 778
39. Vorobieva, V.G., et. al., Preprint IPPE-108, Obninsk (1967).
40. Kuzminov, B.D., et al., Yad. Fiz. 11 (1969) 207
41. Sergachev, A.I., Ph.D. Thesis, IPPE, Obninsk, 1974.
42. Vivès, F., et al., Nucl. Phys. A 662 (2000) 63.
43. Goverdovsky, A.A., Mitrofanov, V.F., Yad. Fiz. 56 (1992) 43.
44. Zöller, C.M., Ph. D. Thesis, TU Darmstadt 1995.
45. Wahl, A.C., Preprint LA-13928, Los Alamos, USA, May 2002.

АКТИНИДТЕРДІҢ БӨЛІНІС ЖАРҚЫНШАҚТАРЫ МАССАЛАРЫНЫҢ ШЫҒУЫН ПРОТОНДАР МЕН НЕЙТРОНДАР АРҚЫЛЫ СИПАТТАУҒА АРНАЛҒАН ЖҮЙЕЛІЛІК

Городисский Д.М., Мульгин С.И., Русанов А.Я., Жданов С.В.

ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан Республикасы

Актинидтік ядролардың тәуелсіз бөлініс модтары жарқыншақтарының салыстырмалы шығуы, орташа шамалары және массалар дисперсиялары мен кинетикалық энергиялары туралы ақпарат алу жөнінде эксперименттік және аналитикалық жұмыстар жүргізілген. Бөлшектер энергиясы 5 – 200 МэВ кезінде Th-дан Bk-ге дейінгі нысана–ядролардың бөлініс жарқыншақтарының массалар шығуының жаңа жүйелілігін құру үшін осы сипаттамалар тәртібінің айқындалған заңдылықтары ұшып келіп соқтығушы бөлшектердің (протондар мен нейтрондардың) нуклондық құрамы мен энергиясына байланысты пайдаланылған.

СИСТЕМАТИКА ДЛЯ ОПИСАНИЯ ВЫХОДОВ МАСС ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ АКТИНИДОВ ПРОТОНАМИ И НЕЙТРОНАМИ

Городисский Д.М., Мульгин С.И., Русанов А.Я., Жданов С.В.

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

Проведены экспериментальные и аналитические работы по получению информации об относительных выходах, средних величинах и дисперсий масс и кинетических энергий осколков независимых мод деления актинидных ядер. Выявленные закономерности поведения этих характеристик в зависимости от нуклонного состава и энергии налетающих частиц (протонов и нейтронов) были использованы для построения новой систематики выходов масс осколков деления ядер-мишеней от Th до Bk при энергиях частиц 5-200 МэВ.

УДК 539.14, 539.17

ИЗГОТОВЛЕНИЕ МИШЕНЕЙ ЯДЕР ^{14}N, ^{16}O ПРИМЕНЯЕМЫХ В ЭКСПЕРИМЕНТАХ ПО ОПРЕДЕЛЕНИЮ СЕЧЕНИЙ РЕАКЦИЙ ^{14}N,^{16}O (P, γ)^{15}O,^{17}F ПРИ НИЗКИХ ЭНЕРГИЯХ НАЛЕТАЮЩИХ ПРОТОНОВ

Буртебаев Н., Бурминский В.П., Джазаиров–Кахраманов В., Зазулин Д.М., Лисицин В.Н., Тулеушев Ю.Ж.

Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

В статье описывается методика изготовления мишеней ядер ^{14}N, ^{16}O методом магнетронного реактивного распыления. Излагается способ определения их толщин и оценки стабильности во время экспериментов.

Введение

Выполнение работ по определению сечений реакций (p, γ) на легких ядрах при низких энергиях, представляющих значительный астрофизический интерес, предполагает изготовление изотопных мишеней с различными толщинами. Известно, что энергетические потери протонов в мишени растут при уменьшении их энергии, а так как сечения подбарьерных реакций имеют крутую зависимость от энергии, то важным моментом становится точное знание энергии ускоренных частиц и ее однородность. Это обстоятельство вынуждает в качестве мишеней использовать сверхзвуковые газовые струи или тонкие пленки с толщинами ~ 10 мкг/см^2, напыленные на толстые подложки. Недостатком газоструйных мишеней является сложность оборудования для получения стабильных газовых струй, а также необходимостью в дифференциальной откачке камеры реакций несколькими насосами, расположенными вдоль оси ионопровода. Эти причины серьезно усложняют эксперимент и значительно увеличивают его себестоимость. Поэтому нами была разработана следующая методика изготовления тонких мишеней, напыленных на подложку и определения их толщин. Получение тонких пленок различных элементов и соединений (ZrO_2, NbN и т. д.) осуществлялось методом магнетронного реактивного распыления. Такой метод, по сравнению с другими способами распыления, имеет наибольшую энергетическую эффективность, высокую скорость осаждения и возможность ее точного регулирования. Пленки материалов имеют высокую чистоту и хорошую адгезию к подложке.

Определение толщин мишеней, их равномерность и стабильность

В качестве подложек мишеней выбирается медь (толщиной ~ 2 мм.), так как необходимо обеспечение хорошего отвода тепла из области реакции. Разработанная технология получения мишеней состояла в следующем. На рабочую поверхность одной из двух одинаковых хорошо отполированных подложек из меди напылялся слой чистого тантала, а на рабочую область другой подложки напылялся тонкий слой чистого алюминия (^{27}Al) толщиной 2×10^{-5} г/см^2 (74нм). Слой чистого тантала толщиной 2×10^{-2} г/см^2 (12 мкм), напыленный на медную подложку, необходим для защиты от фона на примесях подложки, а экземпляр с ^{27}Al прослойкой необходим для определения толщины напыляемого элемента. Затем на рабочие области обеих подложек одновременно (за одну экспозицию) напылялись тонкие слои чистого элемента, так чтобы толщины слоев напыляемого элемента на обеих подложках были одинаковы (с точностью (3-5) %). Для определения толщины мишеней использовалась резонансная камера, установленная на протонном канале ускорителя УКП–2–1, с помощью которой измерялись потери энергии пучка протонов при прохождении сквозь мишень. Для этой цели использовалась реакция $^{27}Al(p,\gamma)^{28}$ Si с узким резонансом E_R=992 кэВ и регистрировались γ-кванты с энергией E_γ = 1779 кэВ. По сдвигам резонанса E_R =992 кэВ реакции $^{27}Al(p,\gamma)^{28}Si$ за счет толщин мишеней (вторые экземпляры мишеней с ^{27}Al прослойками) определялись толщины тонких пленок (Рис. 1). Такой метод позволяет определять толщины пленок в интервале 10÷100 мкг/см^2 с точностью не хуже 5 %.

Разница в толщине мишеней, полученная в 3÷5 % при одновременном напылении на две подложки определялась экспериментально в процессе отладки технологии их изготовления.

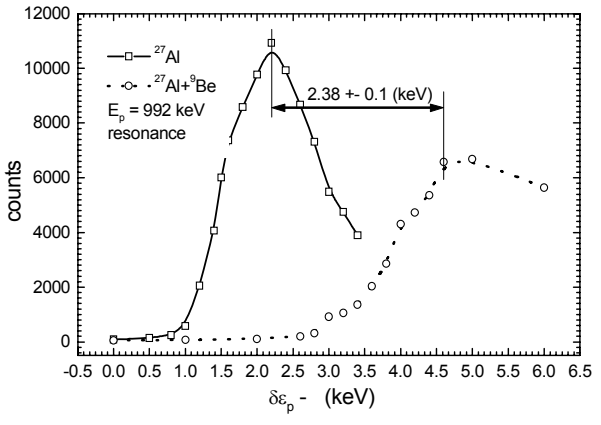


Рисунок 1. Сдвиг резонанса 992 keV реакции $^{27}Al(p,\gamma)^{28}Si$ за счет пленки ^{9}Be. Толщина мишени ^{9}Be 10,75 мкг/см^2 с точностью не хуже 5%

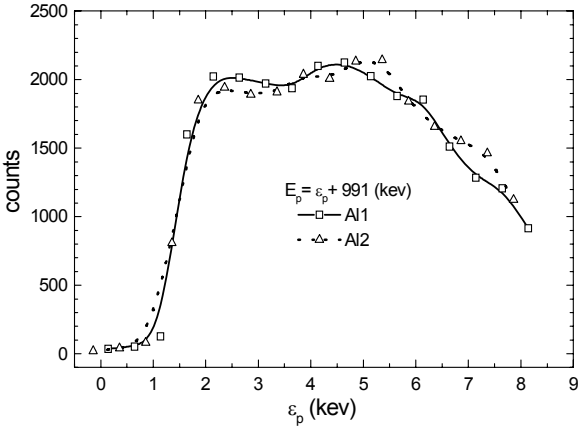


Рисунок 2. Сравнение толщин двух половинок пленки алюминия

Для этого в качестве подложки использовалась медная фольга площадью, превышающей суммарную площадь двух подложек мишеней. Фольга покрывалась тонким слоем алюминия и разрезалась на две равные части. Затем определялась толщина слоя алюминия на каждой части методом измерения потери энергии протонов при прохождении сквозь слой, напыленного алюминия при настройке на резонанс реакции $^{27}Al(p,\gamma)^{28}$ Si с энергией 992 кэВ (Рис. 2). Из рисунка 2 видно, что разница в толщине пленок алюминия находится в вышепреведенных пределах, а также в пределах статистической погрешности.

Стабильность мишеней контролировалась во время длительных экспериментов путем определения зависимости промежуточных значений выходов реакции от собранного заряда налетающих протонов. Толщина мишени также периодически проверялась измерением выхода γ - лучей при фиксированной энергии пучка. Такие наблюдения показали устойчивость (в пределах статистической погрешности) мишеней на используемых подложках.

ИЗГОТОВЛЕНИЕ МИШЕНЕЙ КИСЛОРОДА (ZrO_2)

При осаждении оксида циркония, использована мишень магнетрона из высокочистого металла (99.99 вес. % Zr), полученного электронно-лучевой переплавкой. Распыление циркония проведено в реактивной газовой среде, содержащей 20 % кислорода и 80 % аргона. Давление в вакуумной камере и рабочий ток магнетрона подобраны так, чтобы в плазмохимической реакции с кислородом взаимодействовал весь металл полностью. При этом покрытие состоит из чистого оксида и не содержит примеси свободного металла.

Процесс осаждения пленок из ZrO_2 проведен под надежным аппаратным контролем. Это обусловлено особенностями вольтамперной характеристики реактивного разряда в магнетроне, которая имеет резко отличающиеся между собой участки, соответствующие осаждению покрытий из оксида или из металла.

Дополнительно, при уточнении режимов работы оборудования были получены относительно толстые, 3-5 мкм контрольные пленки. Для этих пленок проведен комплекс исследований структуры и физических свойств.

Анализ рентгеновских дифрактограмм показал, что пленка состоит из моноклинной модификации α-ZrO_2, а дифрактограммы не содержат отражений от металла. Электрическое сопротивление покрытия превышает 0,2 Гом. Поликристаллическая пленка имеет высокую прозрачность и не имеет несплошностей структуры.

При получении пленки использовано вращение подложки и ее ориентация относительно потока плазмы таким образом, чтобы исключить возможную разнотолщинность, связанную с геометрическими факторами процесса. Равномерность толщины на толстых образцах контролировалась с использованием индикаторов часового типа, на более тонких - с использованием ядерно-физических методов. Самые тонкие интерференционно окрашенные слои не имели локальных особенностей цвета на поверхности образцов.

Точность изготовления образцов с заданной поверхностной плотностью пленки, составляет в среднем 5 %. Наблюдения за стабильностью мишеней ZrO_2 показали устойчивость (в пределах статистической погрешности) мишеней на используемых подложках при токовых нагрузках 10 ÷ 15 мкА в течение двух суток непрерывных измерений.

ТЕХНОЛОГИЯ ИЗГОТОВЛЕНИЯ МИШЕНЕЙ АЗОТА (NBN)

Система NbN (Рис. 3.) [1] характеризуется наличием следующих соединений: β-Nb_2N, область гомогенности которого находится в пределах $NbN_{0,39}$ – $NbN_{0,45}$; γ-Nb_4N_3, состав которого изменяется от $NbN_{0,75}$ до $NbN_{0,80}$; δ_1-NbN, состав которого изменяется от $NbN_{0,88}$ до $NbN_{0,91}$; δ'-NbN, имеющее состав $NbN_{0,96}$; ε-NbN, имеющее состав $NbN_{0,92}$ – $NbN_{1,02}$; Nb_4N_5 и Nb_5N_6. Фазовые равновесия в системе носят сложный, до конца не определенный характер.

Получение фазы δ_1-NbN стехиометрического состава зависит от содержания азота в газовой фазе, от количества распыляемого ниобия и энергетического состояния кластеров [2,3]. Это состояние определено мощностью, подведенной к магнетрону, давлением рабочего газа, а также положением и перемещением подложки относительно потока плазмы.

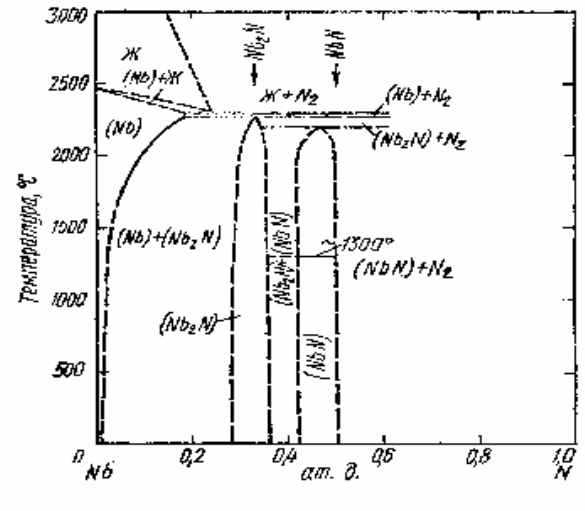


Рисунок 3. Диаграмма состояния системы ниобий-азот

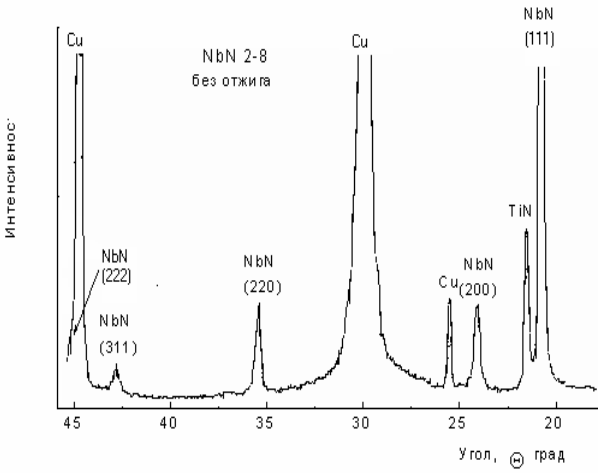


Рисунок 4. Дифрактограмма покрытия из δ_1-NbN, с неискаженной г.ц.к. решеткой, I = 0,3 А, $U_{см.} = 0$

При проведении исследований определяли влияние количества азота в плазмообразующем газе в интервале от 10 до 39 об. %, давления в вакуумной камере от 0,65 до 0,065 Па, подводимой к магнетрону мощности 0,2-1,0 кВт, расстояния от мишени до подложки в пределах 45-100 мм, скорости перемещения подложки относительно потока плазмы 0-1,0 м·с$^{-1}$, напряжения смещения, подаваемого на подложку. В процессе проведения экспериментов, исходя из предположения о заращивании дефектов каждого предыдущего слоя последующим, предложено и реализовано формирование покрытия слоями толщиной до 5 нм.

Методика проведения экспериментов заключается в следующем. Подложку, после предварительной очистки этиловым спиртом, финишной очистки в парах изопропилового спирта и капельного орошения закрепляли на стойках устройства карусельного типа в вакуумной камере установки. После завершения процесса очистки подложки давление в рабочем объеме понижали до $1 \cdot 10^{-3}$ Па, в камеру подавали аргон или аргон и азот, смешанные в определенном соотношении. К подложке подавали напряжение смещения и сообщали ей перемещение относительно магнетронов. Подачей электрической мощности на магнетрон начинали распыление соответствующей мишени и формирование собственно слоя.

Формирование всей толщины покрытия осуществляли нанослоями при многократном пересечении каждым участком подложки потоков плазмы. После завершения процесса нанесения покрытия и отключения мощности давление в камере повышали до атмосферного. Подложку с нанесенным покрытием снимали с карусельного устройства и подвергали физическим и физико-химическим исследованиям.

При проведении испытаний по разработке процесса формирования слоя установлено, что для обеспечения нужного соотношения между ниобием и азотом в напыляемой пленке необходимо точное поддержание в допустимых пределах технологических параметров, влияющих на процесс напыления: тока магнетрона, давления в камере, скорости вращения карусельного устройства, напряжения смещения, концентрации азота в рабочем газе. При повышении тока магнетрона происходит увеличение выноса распыляемого с мишени металла, а также меняется вероятность протекания реакции с азотом и место протекания реакции: от поверхности пленки до поверхности подложки. С этим технологическим параметром прямо связан такой технологический параметр, как давление газа в камере. Избыток газа приводит к появлению обогащенных азотом фаз ε-NbN и δ`-NbN. При недостатке газа образуются бедные азотом фазы β-Nb_2N и γ-Nb_4N_3. И только при строгом соответствии количества распыляемого металла количеству участвующего в процессе синтеза газа синтезируется фаза δ_1-NbN. При этом количество подаваемого газа должно соответствовать мощности откачной системы. Ток магнетрона тоже имеет физическое ограничение сверху: при избытке мощности материал мишени не успевает передавать выделяющееся тепло охлаждающей катод воде, после чего происходит перегрев мишени и нарушение процесса синтеза нитрида.

В результате проведенных экспериментов было получено покрытие из δ_1-NbN, рентгенограмма которого приведена на рисунке 4. Толщину покрытия определяли с помощью взвешивания на микроаналитических весах, а затем, зная скорость формирования покрытия, формировали слои необходимой толщины.

Литература

1. О.М.Барабаш, Ю.Н.Коваль "Кристаллическая структура металлов и сплавов" // Киев, Наукова Думка, 1986, 250С..
2. Tuleushev A. Zh., Tuleushev Yu. Zh., Lisitsyn V. N., Kim S. N., Volodin V. N., Asanov A. B. Plazma-chemical synthesis of niobium nitride-based superconductor// Protocals of 2-nd interantional conference "Nuclear and radiational physics -2 " P.(125-129, Institute of Nuclear Physics NNC RK,1999.
3. Tuleushev A. Zh., Tuleushev Yu. Zh., Lisitsyn V. N., Volodin V. N., Kim S. N. Formation a ribbon superconductor on a niobium nitride matrix by ion plasma sputtering // Presentations of "1. Eurasia conference on nuclear science and its application", Ismir Turkey, 2000, P.893.

ШАПШАҢДАТЫРЫЛҒАН ПРОТОНДАРДЫҢ ТӨМЕН ЭНЕРГИЯ АРАЛЫҒЫНДА ^{14}N(P,γ)^{15}O, ^{16}O(P,γ)^{17}F РЕАКЦИЯЛАРДЫҢ ҚИМАСЫН АНЫҚТАУҒА АРНАЛҒАН ЭКСПЕРИМЕНТТЕРДЕ ҚОЛДАНЫЛАТЫН ^{14}N, ^{16}O ЯДРО-НЫСАНАЛАРЫН ЖАСАУ

Буртебаев Н., Бурминский В.П., Джазаиров–Кахраманов В., Зазулин Д. М., Лисицин В.Н., Тулеушев Ю.Ж.

ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан Республикасы

Мақалада реактивтік магнетродық тозаңдау әдісімен ^{14}N, ^{16}O ядро-нысана жасау методикасы жазылған. Олардың қалыңдығын анықтау және тұрақтылығын бағалау тәсілдері көрсетілген.

PREPARATION OF TARGETS ^{14}N, ^{16}O NUCLEI USED IN EXPERIMENTS FOR DEFINITION OF CROSS - SECTIONS OF REACTIONS ^{14}N, ^{16}O (P, γ) ^{15}O, ^{17}F AT LOW ENERGIES OF PROTONS

N. Burtebayev, V.P. Burminskii, V. Dzazairov-Kakhramanov, D.M. Zazulin, V.N. Lisitsyn, Yu.Zh. Tuleushev

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

In the article the technique of preparation of targets ^{14}N, ^{16}O nuclei by a method of magnetron jet sputtering is described. The way of definition of their thicknesses and estimations of stability during experiments is given.

УДК 539.141./.142

ИЗУЧЕНИЕ РЕЗОНАНСОВ ДАЛЬНОДЕЙСТВИЯ В ЯДЕРНОЙ И АТОМНОЙ ФИЗИКЕ

Такибаев Н.Ж., Пеньков Ф.М., Ливенцова А.С., Ленник С.Г., Красовицкий П.М.

Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Были изучены свойства и характеристики резонансов дальнодействия, даны оценки, предложения и возможные приложения физики резонансных явлений для развития атомной энергетики и ядерных технологий.

Резонансы дальнодействия – явление, отражающее характер структуры объекта, было предсказано и рассчитано в работах [1,2] около 10 лет назад.

Указанное явление, не имеющее аналога в обычных парных квантовых системах, связано с трехчастичностью системы и проявляется при определенных условиях взаимодействия. Эти условия близки к условиям "коллапса" в квантовой системе и могут возникать при различных типах взаимодействий и в различных системах.

Нас интересовали, прежде всего, задачи ядерной и атомной физики. Были изучены свойства и характеристики резонансов дальнодействия, даны оценки, предложения и возможные приложения физики резонансных явлений для развития атомной энергетики и ядерных технологий.

Эффект дальнодействия возникает в квантовых трехтельных (или трехкластерных) системах как результат нелинейного наложения (мультипликации) парных сил и функции Грина (фактора внемассовости взаимодействия). Этим свойством отмечается известная исключительность трехтельных систем по сравнению с остальными. Например, в четырехтельных системах эффект дальнодействия уже не проявляется, также как и в системах большего числа тел или частиц. Конечно, исключения будут составлять системы, где трехкластерная конфигурация становиться доминирующей и вновь возникает мультипликация динамических и кинематических факторов.

Формально дальнодействие эквивалентно переходу от уравнений Фаддеева к

$$f = -V^{eff} + V^{eff}\frac{1}{\varpi}f \ ,$$

где f- упругая амплитуда рассеяния двух сложных частиц, а V^{eff}- их эффективный потенциал, который является функцией не только полной энергии, но и энергий и квантовых чисел кластеров, входящих в состав системы. Причем V^{eff} означает уже более сингулярную зависимость от расстояния $\sim r^{-2}$, которая проявляется при некоторых специальных начальных условиях, как, например, наличие слабовозбужденных парных состояний $\varepsilon^* \to 0$ и полной энергии E, близкой к нулю.

При указанных условиях, решение общих уравнений упрощалось, а сами уравнения отвечали резонансным состояниям. Более того, в случае $\left|\frac{\varepsilon^*}{\varepsilon^0}\right| << 1$ число резонансных состояний неограниченно росло, и они образовывали серию резонансов, эквидистантных по положениям и временам жизни в логарифмическом масштабе энергий [2].

Изучение данных состояний, их движение по энергии с изменением главных характеристик (полной энергии, соотношений масс частиц, энергий парных состояний) было проведено достаточно подробно [3-5].

Дальнейшей задачей был расчет характеристик резонансов дальнодействия для реалистических случаев, когда подбор специальных «резонансных» условий не осуществляется точно. Иными словами, искались решения не в резонансных точках, а в некоторой области вблизи этих точек. Очевидно, что общее решение в этих случаях становится еще более сложным и трудоемким, чем в самих резонансных точках. Однако, поиск решений можно упростить, следуя методу сильной связи каналов или модифицированной теории возмущений.

Действительно, беря в качестве малого параметра ΔV - отклонение формы потенциала от дальнодействующего, а в качестве базовых (невозмущенных) волновых функций полный их набор ψ_n^0 на действующем потенциале, найдем, например, что

$$\frac{d}{d\lambda}E_n = < n \mid \Delta V n >$$

где E_n, ψ_n -энергия и точная волновая функция системы в состоянии n, граничное значение которых при $\lambda = 0$ есть $E_n^0 = E_{res}$ и ψ_n^0.

Причем

$$\frac{d}{d\lambda}\rangle n|\Delta V|n\langle = \sum_s \rangle n|\Delta V|s\langle\rangle s|\Delta V|n\langle\left(\frac{2}{E_n - E_s}\right)$$

отражает факт нелинейности общих уравнений. Можно показать, в случае $|\Delta V / V_{res}| << 1$, что

$$E_n = \frac{E_{res}}{1 - \frac{\lambda\rangle n^0|\Delta V|n^0\langle}{E_{res}}}$$

и задача сводится к определению среднего отклонения потенциала от резонансной формы. Аналогич-

ные оценки находятся и для других динамических величин: средний размер резонансной системы, ширина резонанса и т.д.

Особое внимание было уделено решению принципиальной проблемы задачи трех и более тел – проблеме «движущихся» особенностей, появляющихся в ядрах интегральных уравнений при положительных энергиях. Эта проблема заметно «притормозила» в свое время развитие исследований малочастичной физики в вышепороговой области, т.к. прямые численные решения оказались трудновыполнимыми, терялся контроль точности счета и т.п.[6-8].

Дан способ обхода этой трудности. В результате получена система новых интегральных уравнений, ядра которых не имеют сингулярностей на самом контуре интегрирования.

Способ обхода особенностей ядер исходных интегральных уравнений основан на сдвиге части контура интегрирования с вещественной оси в комплексную область. Такой сдвиг производится для специального вспомогательного решения $r(y)$, являющегося аналитической функцией в верхнем полукруге радиуса 1 (если все импульсные переменные отнормированы на k_Z, где полная энергия системы равна $E_Z = Const \cdot k_z^2$, а массовый коэффициент *Const*=3/4, если все массы равны единице). При этом численное решение нового уравнения уже не встречает трудностей и может проводится в рамках стандартных расчётных схем [9] .

Одним из решений новой системы уравнений, полученной в предлагаемом способе, является собственно физическая амплитуда. Поэтому, в отличие от обычных приёмов (см., например, [7]), здесь не требуется проводить специальных дополнительных анализов и расчётов для нахождения этой важной величины.

Решение этой принципиальной проблемы дает возможность расширить расчеты задач рассеяния сложных квантовомеханических систем на всю область энергий.

Определение скоростей ядерных переходов из мезомолекулярных резонансов. Важность этой задачи в проблеме мю-катализа не подлежит сомнению, а в проблеме резонансов «дальнодействия» она является важной прикладной иллюстрацией.

Были сделаны теоретические оценки для скорости ядерного перехода λ из молекулярной системы «$^3He+\mu+d$». Работа была выполнена в рамках сотрудничества с ОИЯИ (Дубна).

Известно, что в случае стационарных уровней работает обычное приближение Джексона:

$$\sigma_n = Const\,|\,\Psi(0)\,|^2 .$$

Ситуация усложняется для резонансных уровней, т.к. для резонансов рассеяния Ψ - осциллирующая функция и ненормируемая в нуле. Чтобы найти в этом случае аналог приближения Джексона, были использованы решения Йоста, особенностью которых является обращение в нуль в резонансной точке. В результате следует, что отличие от формулы Джексона будет в замене:

$$|\,\Psi(0)\,|^2 \to \frac{1}{2}\,\mathrm{Re}\,\Psi_{res}{}^2(0) .$$

Оказалось возможным оценить скорости переходов. Для переходов из резонансного состояния $\lambda_{res}=3.8\cdot10^6 c^{-1}$ и для перехода из обычного стационарного состояния $\lambda_0=5.3\cdot10^5 c^{-1}$.Очевидно, что переходы из резонансных состояний сравнимы или даже больше, чем переходы из стационарных состояний. Очевидно, что их вклад является существенным в проблеме мю-катализа. Это подтверждается и данными экспериментов [10,11].

Роль резонансных состояний в каталитических реакциях должна вообще явиться предметом специальных исследований. Сами же резонансы «дальнодействия» имеют хорошие перспективы, как в плане приложений, так и в плане их дальнейшего изучения. Теоретические оценки скоростей ядерного синтеза из молекулярного резонанса $^3He\mu d$ были положены в основу экспериментов в ЦЕРНе.

Были проведены исследования различных электрон-атомных систем с целью систематизации характеристик сродства электронов. Этот этап был важен для определения параметров эффективных потенциалов взаимодействия в системе "электрон+2 атома". Затем результаты такой трехчастичной задачи использовались для определения эффективных потенциалов систем «электрон+3 атома», т.е. в задаче четырех тел.

Были определены основные параметры трехтельных эффективных потенциалов: $V_{mn}^{eff} = \langle m | \tau_n \rangle$, где $\langle m|$ есть волновая функция (eA)-системы с модельным потенциалом - сепарабельным, но с кором отталкивания на малых расстояниях, $|\tau_n\rangle = V|\psi_n\rangle$ - аналог парной полумассовой t-матрицы, а знак тильда $\left(|\tilde{m}\rangle\right)$ означает, что парная волновая функция берется «внемассовой» в пространстве трех частиц. Такая конструкция типична в подходе эффективного потенциала взаимодействия.

Таким образом, определение V^{eff} состоит в проведении расчетов для амплитуды $|\tau_n\rangle$ и корректного внемассового продолжения для волновой функции $\langle \tilde{m}|$. Обе эти процедуры не представляют принципиальных трудностей для анализа и сводятся к численным решениям соответствующих парных задач.

Более сложной задачей является следующий этап - решение трехчастичной задачи, а именно, определение амплитуды упругого рассеяния (амплитуды реакции перестройки): $A+eA\to eA+A$ и поиск резонансных решений.

С этой целью были составлены счетные программы и проведена оптимизация этих программ.

Были проведены численные расчеты при нескольких различных параметрах парных сил и уточнены области энергий, где проявляется аномальное резонансное поведение.

Найдены аномальные состояния в электрон-многоатомных системах с характерными размерами порядка сотни ангстрем и огромными временами жизни. Описание таких сложных систем несколько упрощается в приближении Борна-Опенгеймера, которое здесь оправдано, так как отношение массы электрона к массе ядра ничтожно мало.

Оказывается, что если система «$A+e$» не имеет реального связанного состояния, а лишь слабосвязанный виртуальный уровень, то это уже достаточно для появления дальнодействия в системе «$A+A+e$». При этом эффективный потенциал имеет кулоноподобное поведение: $U\sim C_2/y$ в области: $R << y << | k |^{-1}$.

Результат здесь получается следующий: система «$2H+e$» имеет 2 уровня с энергиями: $E_1^* = -0.487K$, $E_2^* = +3.5\cdot 10^{-5}K$ причем существование этих уровней обязано эффекту «дальнодействия».

Отметим, что системы «$He+He$» и «$He+e$» не имеют сами по себе собственных связанных состояний. Еще интересней оказываются системы «3 атома+электрон», хотя технические трудности возрастают существенно (т.к. это уже задача 4-х тел).

Эффективный потенциал U имеет дальнодействующую часть, но оказывается более глубоким, чем в предыдущей задаче:

$$U \cong -\frac{C_i^2}{2m_e r_i^2} - \frac{C_i k}{m_e r_i},$$

где r_i положение атома «i» в с.ц.и. $C_i > C$, $C_2=(8+C)\exp(-C)$, $C=1.473$ C – предельное значение для констант связи C_i.

Оценки предельного числа уровней в системе и минимального радиуса области «дальнодействия» дают: для системы «^6Li+e» - $N \cong 1.6\cdot 10^3$ $R_{min} \cong 20$ Å и для системы «$^{133}Cs+e$» - $N \cong 4\cdot 10^4$ $R_{min} \cong 34$ Å .

Укажем на главные особенности, присущие аномальным системам: большие средние расстояния между атомами, порядка нескольких десятков ангстрем; большие времена жизни, порядка 10^{10}сек. и более; масштаб энергий резонансов порядка тысячных долей электронвольта.

Отсюда следуют основные свойства аномальных атомно-электронных состояний: при сверхнизких температурах или в покое они живут очень долго; имеют огромные сечения взаимодействия с внешними частицами или полями. Это определяет их уникальное прикладное значение, которое еще подлежит изучению.

Резонансные переходы под воздействием внешних сил. Новые приложения резонансной физики связаны с инициированными переходами между резонансными состояниями путем воздействия извне, в частности, сильными электромагнитными полями.

В отличие от столкновений с внешним телом, вероятность которого не велика, действие внешней силы продолжительно по времени. В случае, если эта внешняя сила (электромагнитное поле) настроена на резонансную частоту перехода, то даже при относительно слабом поле резонансный переход становится возможным. Примеров этому и в ядерной, и в атомной физике достаточно.

В рассматриваемой задаче объектом исследования берутся резонансы в малочастичных системах. Несмотря на то, что малочастичные системы являются сильно-взаимодействующими, характерные энергии которых порядка Мэв, резонансы дальнодействия, проявляющиеся в этих системах вблизи порога развала, имеют энергии возбуждений порядка электронвольт и даже менее.

Модификацией задачи (но не в поле внешней периодической силы, а в поле потенциального барьера) является задача прохождения через барьер резонансно-взаимодействующей пары.

Рассмотрено прохождение двух связанных частиц через отталкивающий барьер. Продемонстрирован простой механизм возникновения барьерных резонансов, приводящий к аномальной прозрачности барьера по сравнению с вероятностью прохождения бесструктурных объектов. Для аналитической и численной демонстрации указанного эффекта прозрачности сначала была выбрана модель с парой тождественных частиц, связанных осцилляторным взаимодействием, проходящих через одномерный отталкивающий барьер.

Рассчитаны коэффициенты отражения и прохождения сложных частиц через потенциальные барьеры с различными характеристиками: "высокий", "низкий", "узкий", "широкий". Эффект "квантовой прозрачности", т.е. вероятность прохождения двухпикового барьера W выражается через однократные вероятности W_1 и W_2 в форме:

$$W = \frac{W_1 W_2}{1+ | S_1 |^2 | S_2 |^2 - 2 | S_1 | | S_2 | \cos\theta},$$

где S_1 и S_2 - соответствующие матрицы рассеяния, а θ - удвоенная разность фаз. Ясно, что при уменьшении знаменателя в этой формуле вероятность W увеличивается и, соответственно, возникает эффект "прозрачности". Следует, однако, отметить, что полная вероятность всегда остается ≤ 1 (амплитуды и переходы между каналами связаны друг с другом жесткими соотношениями и ограничениями, например, $|S_1|^2 + |S_2|^2 = 1$).

Изучалась связь явлений "квантовой прозрачности" и параметрического резонансного возбуждения составных частиц с внешними периодическими полями. Найдено, что описание явлений сводится к подобным формам. Намечено дальнейшее исследо-

вание общности явлений и возможности их взаимных приложений в атомной физике.

Рассматривались условия эксперимента прохождения через микроскопическое отверстие димеров гелия $He-He$, т.е. количество димеров до и после стенки с отверстием. Показано, что двухчастичное туннелирование связано с вероятностью перехода 2→3[12].

Изучение ядерных реакций в средах с упорядоченной внутренней структурой является интересным для физики резонансных явлений, например, для определения эффектов взаимовлияния среды и процессов, происходящих с частицами, внедренными в эту среду. Такую искусственную структуру и не нужно создавать - в природе уже имеется естественный аналог - кристалл. Причем, примером внедрения в объем кристалла пучков ускоренных частиц может служить явление каналирования. При определенных условиях (т.е. при особых свойствах кристалла, энергии ускоренных частиц, углах их падения на поверхность кристалла и прочее) возникает явление или эффект каналирования пучка частиц вглубь кристалла вдоль его оси или между его плоскостей. При этом частицы движутся по каналу с незначительными потерями энергии.

Существенным при этом является процесс эффективного сжатия проникающего в кристалл пучка заряженных частиц плоскостями этого кристалла, т.е. процесс формирования каналированного пучка. Фокусировка пучка будет обусловлена эффективным межплоскостным потенциалом, отталкивающим одноименно заряженные частицы пучка от плоскостей кристалла в срединную область между плоскостями.

Особый интерес при этом имеют внешние поля, периодические по времени, у которых проявляются резонансы по частотам, совпадающим с характерными частотами для самой сложной системы.Дана общая формулировка динамических уравнений для описания переходов в сложных системах под воздействием внешних сил, зависящих от времени [13].

Известно, что амплитуды переходов между состояниями системы определяются уравнениями общего вида

$$i\hbar\frac{d}{dt}C_{mn}=\left\langle\psi_m\left|\hat{V}(t)\right|\psi_n\right\rangle\ ,$$

где $\hat{V}(t)$ - зависящая от времени внешняя сила.Задача заключается в определении (моделировании) такой силы, определении волновых функций ψ_m , т.е. характерных параметров системы и граничных условий.

В качестве ψ_m были взяты волновые функции легких ядер в кластерном представлении (двух- или трехкластерном), моделирующие основные и возбужденные состояния этих ядер.Удобно перейти в систему отсчета, связанную с движущейся сложной частицей. Тогда среда (кристалл) должна описываться как движущаяся, а упорядоченность ее структуры вести к периодической зависимости по времени. Таким образом, моделируется $\hat{V}(t)$.

В наиболее простом варианте, когда учитываются кулоновские силы без экранировки, действующие между сложной частицей и ядрами решетки, $\hat{V}(t)$ может быть записано как

$$\hat{V}(t)\cong Const\,\frac{1}{d}\left[\vec{n}\frac{tg\,\omega t}{2\pi}+\frac{\vec{\rho}_\perp+\vec{r}_i}{d}\right]^{-1},$$

где d - длина решетки, $\omega=\dfrac{2\pi}{T}$, $T=d\Big/\sqrt{\dfrac{2}{m}E_{kin}}$, E_{kin} - кинетическая энергия сложной частицы, $\vec{n}$ - направление оси кристалла, $\vec{\rho}_\perp$ - поперечный радиус положения сложной частицы между плоскостями кристалла, $\vec{r}_i$ - внутренние координаты сложной частицы. Несколько иное, но близкое выражение для внешней силы было получено определением Фурье-компонент для движущейся среды.

Если $\hat{V}(t)=V_0\exp(i\omega t)$ является периодической функцией с частотой ω, то при $\omega=\pm\omega_{mn}$, $\omega_{mn}=E_m-E_n$ в системе проявляется резонанс. Существенно, что в этой области теория возмущений уже не работает и нужно использовать систему нелинейных уравнений. В случае простой двухуровневой системы имеем

$$\psi(t)=C_1\psi_1^0+C_2\psi_2^0,$$

где

$$\hbar^2\frac{d^2}{dt^2}C_2+\left|V_0\right|^2C_2=0\ ,\ \left|C_1\right|^2+\left|C_2\right|^2=1\ .$$

Особенностью данной системы является периодическая перекачка из одного состояния в другое.

В более сложных случаях выделение главных (резонансных) членов нелинейных уравнений и их число зависит от конкретных свойств резонансных уравнений (т.е. ψ_m) и резонансных свойств внешней силы $\hat{V}(t)$.

Рекомендации по постановке экспериментов и теоретических исследований. Развитие направления включает в себя обоснование возможности управляемого ядерного синтеза, в основе которого лежит осуществление реакций ядерного синтеза внутри кристалла. Такие реакции предполагается исследовать на встречных каналированных пучках легких ядер. Энергии ядер предполагаются не очень высокими (порядка нескольких МэВ).

Ряд экспериментов может быть проведен по изучению эффективности реакций в кристалле типа: $d+t$ или $d+{}^3He$.

Процессы ядерного синтеза на каналированных пучках легких ядер внутри кристалла могут быть реализованы в нескольких вариантах. Все они могут использовать в той или иной степени фокусирующие свойства упорядоченной структуры (кристалла) [14].

Интересный вариант изучения ядерных реакций внутри кристалла связан с формированием ядер-мишеней в объеме кристалла. Например, имплантированием требуемых ядер-мишеней в пространство между узлами решетки.

Так при имплантировании в кристалл атомов ^{6}Li и затем каналировании пучка дейтронов возможна чистая реакция: $d + {}^{6}Li \prod \alpha + \alpha + 22.4$ Мэв, т.е. реакция без вредных радиоактивных продуктов на выходе.

Возможно также формирование кристаллов, в узлах которых расположены ядра-мишени (например, атомы легких ядер). Поиск температурных режимов, когда явление каналирования еще имеет место, а тепловые колебания ведут к увеличению вероятности столкновений этих легких ядер с каналированными частицами, может также явиться объектом исследований.

Более сложный вариант предполагает использование явления резонансного "разбухания" ядра, участвующего в реакции, до аномально больших размеров. При этом резко возрастает сечение ядерных реакций. Идея состоит в предварительном возбуждении частиц одного из пучков. Резонансное возбужденное состояние должно иметь аномально большой эффективный размер (как слабосвязанная система). В качестве резонансных частиц могут быть выбраны ядра, которые имеют резонансные нейтронные возбуждения.

Заселение возбужденных состояний может быть осуществлено внешним воздействием, например, лазерным облучением. Возбужденные ядра, каналированные в кристалл можно рассматривать как потенциальный источник нейтронов, например, резонансные состояния ядер тяжелых элементов (^{106}Cd, ^{150}Sm, и др.) отвечают слабосвязанному нейтронному возбуждению.

Литература

1. Такибаев Н.Ж., Ф.М.Пеньков. Трехчастичные резонансы перед порогом возбуждения пары //ЯФ, 1992,, т.55, вып. 3.
2. Такибаев Н.Ж., Ф.М.Пеньков. Резонансы эффективного дальнодействующего потенциала в задаче трех тел // ЯФ, 1994, т.57, вып. 7.
3. Пеньков Ф.М. Эффекты дальнодействия в трехчастичных молекулярных системах. //ЖЭТФ, 1996, т.109, вып. 3, стр. 721.
4. Pen'kov F.M., Takibaev N.Zh. The effective potential in three-body problem. //ЯФ, 1993, т.56, вып. 7, стр. 12.
5. Pen'kov F.M., Takibaev N.Zh. The effective Long-range interaction in three-body problem. //ЯФ, 1993, т.56, вып. 7, стр. 97
6. Few-Body Systems, Acta Physica Austriaca New Series, 1995, v.19, № 3.
7. Беляев В.Б. «Лекции по теории малочастичных систем», Москва, Энергоатомиздат, 1986.
8. Э.Шмид, Х.Цигельман «Проблема трех тел в квантовой механике» , Москва, Наука, 1979.
9. Такибаев Н.Ж. Решение проблемы движущихся логарифмических особенностей //ЯФ, 2000, т.63, № 4.
10. Быстрицкий В.М., Пеньков Ф.М. и др.. Новый подход к экспериментальному изучению ядерных реакций при сверхнизких энергиях. //Nucleonica, 1998, v.42, p.775-794.
11. Rousso D.L., Pen'kov F.M. et al. Измерение ядерных реакций синтеза в $\mu D^{II} e$ -молекулах. PSI-ANNUAL Report, 1998, p.51.
12. Пеньков Ф.М. Докторская диссертация, ОИЯИ, Дубна.
13. Красовицкий П.М., Такибаев Н.Ж. Возбуждение резонансных состояний составных частиц при каналир овании в кристалле. //Известия РАН, сер. физ., 2003, т. 67, стр. 1588.
14. Takibaev N.Zh. Nuclear Fusion Reactions (on) with Ion Beams Channeled in Crystal. //2002,v. 25, № 3, p. 96.

ЯДРОЛЫҚ ЖӘНЕ АТОМДЫҚ ФИЗИКАДА АЛЫС ӘРЕКЕТ РЕЗОНАНСТАРЫН ЗЕРТТЕУ

Тәкібаев Н.Ж., Пеньков Ф.М., Ливенцова А.С., Ленник С.Г., Красовицкий П.М.

ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы

Алыс әрекет резонанстарының қасиеті мен сипаттамалары зерттелген, бағалау, ұсыныстар және атомдық энергетика мен ядролық технологияларды дамыту үшін резонанстық құбылыстар физикасынын мүмкін болатын қолданыстары берілген.

THE STIDY OF LONG-RANG ACTION RESONANCE IN THE NUCLEAR AND ATOMIC PHYSICS

Takibayev N.Zh., Pen'kov F.M., Lennik S.G., Liventsova A.S., Krassovitsky P.M.

Institute of nuclear physics of National nuclear center of Republic of Kazakhstan, Almaty.

The properties and characteristics of long-rang action resonance were studied; evaluations, suggestions and possible application of the resonance phenomena physics for the development of atomic power engineering and nuclear technologies were given.

УДК 621.039.8

МНОГОЦЕЛЕВАЯ ГАММА-УСТАНОВКА ДЛЯ РАДИАЦИОННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ И ИССЛЕДОВАНИЙ ВОЗДЕЙСТВИЯ ОБЛУЧЕНИЯ НА СТРУКТУРУ И СВОЙСТВА МАТЕРИАЛОВ

Жотабаев Ж.Р.

Национальный Ядерный Центр Республики Казахстан, Курчатов

В статье описываются возможности многоцелевой гамма-установки для практического применения радиационных технологий, основанных на на воздействии гамма-излучения радиоактивных изотопов на различные вещества (пищевые и сельскохозяйственные продукты, медицинские инструменты и материалы, промышленные материалы).

Сохранение пищевых продуктов является актуальной проблемой во всем мире и Республика Казахстан не составляет исключения. Как известно из официальных источников информации, примерно 20-50% сельскохозяйственной продукции пропадает из-за различного рода потерь и порчи, поэтому сохранение пищевых продуктов представляет собой проблему не менее важную, чем их производство. В связи с этим более разумно сохранять уже произведенную продукцию, чем увеличивать ее производство для компенсации последующих потерь. Помимо предотвращения прямых потерь все возрастает потребность в продуктах питания, сохраняющих свои питательные качества в течение длительного периода их хранения. Значительный рост цен на энергоносители в последнее время заставляет пересматривать эффективность традиционных методов сохранения пищевых продуктов с точки зрения энергетических затрат, требуемых для их применения. Поэтому все большую важность приобретает задача разработки технологии, которая позволит сохранять пищевые продукты и их полезные качества при минимальных затратах энергии. Кроме этого, некоторые традиционные технологии, например высушивание, обработка химическими веществами, копчение, в настоящее время поставлены под сомнение в плане их биологической безопасности, экономичности и возможного снижения качества обработанных такими методами продуктов.

Мировой опыт исследовательской работы в области сохранения пищевых продуктов с помощью гамма-излучения показали, что эта технология позволяет снизить потери урожая и производить продукты, безопасные для употребления. По сравнению с обычными методами сохранения пищевых продуктов технология радиационной обработки требует значительно меньших затрат энергии и может заменить или резко снизить применение пищевых консервантов и фумигантов, которые представляют опасность как для потребителей, так и для работников предприятий пищевой промышленности. Облучение пищевых продуктов, обычно с помощью гамма-излучения от источника Co-60, обладает целым рядом преимуществ по сравнению с традиционными методами. Облучение не только замедляет процессы, которые приводят к началу нежелательных физиологических изменений (прорастание, перезревание), микробиологических повреждений (гниение, образование плесени) и повреждений, вызываемых насекомыми, но также может уничтожить болезнетворные организмы, которые поражают пищевые продукты, если их оставить без обработки. Благодаря способности замедлять прорастание корнеплодов, убивать паразитов, насекомых и микроорганизмы, а также сдерживать процессы созревания в хранимых овощах и фруктах гамма-лучевая обработка представляет собой фактически метод сокращения потерь собранного урожая и повышения питательности пищевых продуктов. Более того, эта технология позволяет облучать уже расфасованные продукты питания. Поскольку радиационная обработка пищевых продуктов не связана с их нагревом, использование этого метода обеспечивает сохранение их свежести и товарного вида. Метод лучевой обработки может также эффективно применяться как средство карантинной обработки ряда пищевых продуктов и таким образом способствовать развитию международной торговли.

В настоящее время порядка 160 гамма-установок в мире используются только для целей обработки пищевых продуктов, и число их неуклонно растет, особенно в странах с жарким климатом. Число видов облучаемых пищевых продуктов составляет более 30 единиц. Это – картофель, лук, фрукты, мясо, рыба, птица и другие с/х продукты. Радиационная технология основана на использовании энергии излучения в целях инициирования химических реакций, индицирования биологических изменений или изменения химических и физических свойств материалов. При применении обычной небольшой поглощенной дозы одного киловатта энергии излучения достаточно, например, для замедления прорастания, а, следовательно, и порчи картофеля при скорости обработки 10 тонн в час. С другой стороны, при применении большой поглощенной дозы, например, можно стерилизовать медицинские изделия со скоростью около 2000 шприцев в час или примерно 15-20 млн. в год. В этом и других видах применения радиационная обработка имеет в целом значительные преимущества перед альтернативными промышленными процессами, связанными с исполнением химикатов и тепла. Почти в каждом виде

применения радиационной обработки наблюдается существенная экономия энергии по сравнению с другими технологическими методами. К преимуществам радиационной обработки относятся также надежность и простота управления соответствующими процессами, сокращение или полное исключение промышленных загрязнителей, высокое даже уникальное в отдельных случаях качество продукции. Еще один момент, которому часто не придается должного значения, - высокий уровень безопасности на промышленных радиационных установках, эксплуатируемых уже в течение длительного периода.

Наряду с обработкой пищевых продуктов радиационная технология находит широкое практическое применение во многих других промышленных процессах. Примерами таких процессов являются: радиационная стерилизация, радиационная структурирование, радиационное отверждение и прививка, обеззараживание сточных вод и др. Причем в этих процессах используется примерно 90% установленной мощности излучения, т.е. коэффициент утилизации энергии очень высок, а значит, высок к.п.д. использования источника.

Радиационная стерилизация медицинских принадлежностей в ряде технологически развитых стран является хорошо утвердившейся промышленной технологией. Излучение в качестве стерилизующего агента обладает целым рядом уникальных преимуществ перед традиционными стерилизующими агентами такими, например, как тепло и токсические окислы этиленового газа:

1. Гамма-излучение легко проникает во все части стерилизуемого предмета благодаря его высокой проникающей способности. Предметы могут быть заранее упакованы в герметичные упаковки, непроницаемые для микроорганизмов, перед стерилизацией. Соответственно, время сохранения стерильности при хранении этих материалов практически неограничено и стерильность сохраняется до момента использования.
2. На уровне применяемой стерилизующей дозы (2-3 Мрад) излучение не вызывает существенного повышения температуры. Являясь «холодным» процессом, он позволяет стерилизовать материалы, разрушающиеся под действием тепла. Этот процесс является лучшим и иногда единственным методом для стерилизации биологических тканей и препаратов биологического происхождения.
3. Излучение обладает минимальной вероятностью вызвать неблагоприятную химическую реакцию.
4. Стерилизующий эффект излучения является практически мгновенным и одновременным на весь объем в целом. Этот процесс также позволяет остановить действие излучения в нужный момент. Таким образом, радиационная стерилизация удобна для непрерывного, полностью автоматизированного процесса, при котором необходимо регулировать только один параметр, а именно время облучения. Паровая (автоклавирование) и химическая (окись этилена) стерилизация, кроме того, что они используются только для отдельных партий, требуют контроля температуры, времени, давления, концентрации, упаковки и влажности.

Поэтому метод радиационной стерилизации явился началом новой эры в здравоохранении и несет в себе много потенциально полезного.

Радиационное структурирование (проводов, покрышек, пластиков, пенопластов) основано на изменении свойств полимеров путем индуцирования химических связей между отдельными макромолекулами. Являясь весьма эффективным инициатором этого химического процесса излучение трансформирует полимер в молекулярную структуру с двумя важными особенностями: она «не течет» при повышенной температуре, а при превышении точки плавления возникают свойства, присущие резине. Первая особенность имеет очень большое значение для изоляции проводов и кабеля, а вторая - при производстве сжимающихся от тепла материалов и полимерной пены. По сравнению с химическим, радиационное структурирование более эффективно в стоимостном отношении, менее энергоемко, требует меньших площадей и более надежно в управлении. Провода небольших размеров, например, могут структурироваться только с помощью обучения. Радиационное структурирование можно использовать для вулканизации резины автомобильных покрышек, сополимеризации сантехнических изделий, мембран, деревянных изделий. Деревянно-пластиковые композиты можно производить путем индуцируемой облучением полимеризации мономера, пропитывающего дерево. В результате получаются деревянные изделия с великолепными механическими свойствами, даже если исходным материалом являлось низкосортное дерево. Например, в США этот метод применяется для изготовления половых досок (паркет), изготовления мебели, во Франции и Чехословакии – для сохранения художественных предметов, сделанных из дерева.

Таким образом, видно, что радиационная технология с использованием гамма-излучения является мощной альтернативой многим технологиям, применяемым в настоящее время в различных отраслях народного хозяйства. Процесс радиационной технологии не дешев, но число различных видов его успешного применения показывает, что он достиг стадии коммерческого применения благодаря своим техническим и экономическим преимуществам. По стоимостным показателям радиационная обработка может быть более дешевой, одинаковой или более дорогостоящей, чем альтернативные методы. Главные компоненты, составляющие стоимостные показатели мощных гамма-установок в основном определяются стоимостью источника излучения (до 70%) и защитных средств (20%). В качестве источника излучения в основном используется радиоизотоп Кобальт-60, а в качестве

защитных средств, в зависимости от типа установки (стационарная или передвижная) – бетон или свинец соответственно. В Республике имеются действующие ядерные реакторы, способные производить радиоизотоп кобальт – 60, а также в хранилище хранится большое количество ампульных источников ионизирующего излучения, среди которых есть и кобальтовые источники, имеются квалифицированные специалисты, имеющие большой опыт работы с радиоактивными изотопами и облучательными процессами. Здесь уместно отметить, что в 1970-1985 годах на реакторе ВВР-К дочернего предприятия «Институт Ядерной Физики» Национального Ядерного Центра Республики Казахстан успешно проводились экспериментальные работы по гамма-облучению сельхозпродуктов и скота «горячими» отработавшими тепловыделяющими сборками, как источники мощного гамма-излучения. Все это позволяет в перспективе наметить проработку вопроса создания региональной мощной гамма-установки, на которой можно было бы продемонстрировать полезность ее использования в народном хозяйстве города, области, Республики. Дальнейшая перспектива развития радиационной технологии видится в тиражировании, на основе накопленного опыта, как стационарных, так и передвижных облучательных установок при больших овощехранилищах и вблизи тех производств, где выгода использования такой технологии очевидна.

В научном плане на такой установке можно проводить фундаментальные исследования по влиянию гамма-облучения на структуру любых органических соединений, в зависимости от дозы облучения и других условий. Эти исследования должны, например, дать возможность решить задачу по установлению оптимальной дозовой нагрузки облучаемых продуктов. Широкие перспективы могут получить радиобиологические исследования в области мутагенеза и селекции растений. Гамма- облучение семян позволяет увеличить генетическое разнообразие сельскохозяйственных культур, из которых можно выбрать наилучшие генотипы, способные образовать сорта с требуемыми характеристиками: более высокой урожайностью, устойчивостью к неблагоприятным климатическим условиям и воздействию соленой воды, а также повышенной болезнестойкостью. Индуцированная мутация живого организма с помощью гамма-облучения приводит к модификации нуклеозида в ДНК. Поскольку ДНК играет центральную функциональную роль в передаче генетического кода, то, чтобы исследовать этот вопрос, необходимы идентификация модифицированных нуклеиновых оснований, установление природы модификации и определение структуры модифицированных нуклеиновых оснований. Эта задача, являющаяся, главным образом, проблемой физической химии решается с помощью ряда последовательных операций. Однако, из-за очень низкой концентрации модифицированных ДНК, изучение структуры модифицированных нуклеиновых оснований встречает значительные трудности. В преодолении этих трудностей, а также для упрощения всех предыдущих операций по установлению структуры ДНК перспективным является использование метода плазменно-десорбционной масс спектроскопии (ПДМС). Метод ПДМС обладает рядом уникальных достоинств [1,2]:

- малое количество анализируемого вещества (10^{-12} Моль);
- экпрессность;
- возможность регенерации исследуемых веществ, поскольку они мало подвергаются деструкции;
- теоретически неограниченный верхний диапазон регистрируемых масс, что позволяет проводить анализ масс практически любых сложных органических соединений и биомолекул.

При облучении веществ большими дозами гамма-излучения возникает задача точного определения интегральной дозы, полученной облученным предметом. Есть несколько способов определения высоких доз. В таблице 1 приведены некоторые виды дозиметров, перспективных для использования на установках радиационной обработки материалов [3].

Таблица 1.

№	Дозиметрическая система (метод)	Диапазон регистрации, Грей
1	Аланин	1,0 - $1x10^7$
2	Сульфат железа (дозиметр Фрике)	$3x10^1$ - $4x10^4$
3	Сульфат железа, насыщенный кислородом (супер Фрике дозиметр)	$3x10^1$ – $2x10^5$
4	Радиохромные красители	$5x10^1$ – $1x10^7$
5	Термолюминесцентные детекторы	$2x10^{-4}$ – $1x10^5$
6	Фоточувствительные пленки	$2x10^{-4}$ – $1x10^7$
7	Стекла	$1x10^2$ - $5x10^6$
8	Этанол - хлорбензол	$1x10^2$ - $1x10^7$
9	Железо-медный дозиметр	$6x10^2$ – $8x10^5$
10	Сульфат церия	$1x10^2$ - $2x10^7$
11	Бихромат калия	$1x10^1$ - $1x10^5$
12	Щавелевая кислота	$7x10^3$ - $5x10^7$
13	Полиметилметакрилат	$1x10^3$ - $5x10^6$
14	Поливинилхлорид (пленки)	$5x10^3$ - $7x10^6$
15	«Голубой» целлофан	$5x10^3$ - $1x10^7$

Из приведенных в таблице методов дозиметрии наиболее точным является метод измерения электрон спиновых резонансов (ESR) в аланине. В НЯЦ РК имеется возможность реализовать такой метод измерения ESR не только в аланине, но и в других веществах, содержащихся в облучаемых продуктах. Сочетание методов ПДМС и ESR открывают широкие перспективы исследований структурных изменений и свойств веществ под действием гамма-излучения. Тесное сотрудничество в этих исследованиях с биологами, химиками-органиками и специалистами Института Питания должно быть весьма перспективным в плане достижения высоких научных и практических результатов. Конечно, фундаментальные исследования можно было бы проводить и на установках небольшой мощности, однако для изучения дозовых характеристик облучаемых продуктов и влияние мощности дозы на их свойства необходимо иметь установку большой мощности, поскольку, в этих исследованиях важную роль играет фактор времени облучения для достижения той или другой дозы, интенсивность излучения. Кроме того, эти исследования должны проводиться не отвлеченно, а связаны непосредственно с изучением влияния облучения на те продукты, которые будут проходить радиационную обработку. В этом плане необходимо тесное взаимодействие науки с практикой.

Литература

1. Жотабаев Ж.Р.,Сеилова К.С., Даукеев Д.К., «Применение плазменно-десорбционной времяпролетной спектроскопии в медицине и биологии», Препринт ИЯФ АН КазССР, Алматы, 1991.
2. Жотабаев Ж.Р., « Времяпролетный масс-спектрометр с возбуждением вторичных ионов осколками деления», ВАНТ, серия Техническая физика и автоматизация, Москва, 1997, вып.2, с.59.
3. Ionizing Energy in Food Processing and Pest Control, 11, Applicftions (Task Force Rep. №115. Iowa: CAST, 1989.

РАДИАЦИЯЛЫҚ ТЕХНОЛОГИЯЛАР МЕН МАТЕРИАЛДАРДЫҢ ҚҰРЫЛЫМЫ МЕН ҚАСИЕТІНЕ СӘУЛЕЛЕНУДІҢ ТИГІЗЕТІН ӘСЕРІН ЗЕРТТЕУГЕ АРНАЛҒАН КӨП МАҚСАТТЫ ГАММА-ҚОНДЫРҒЫ

Жотабаев Ж.Р.

Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы

Мақалада радиоактивті изотоптардың гамма-сәулеленуінің түрлі заттарға (тамақ және ауылшаруашылық өнімдері, медициналық құрал-саймандар мен материалдар, өнеркәсіптік материалдар) әсер етуіне негізделген радиациялық технологияларды тәжірибеде қолдануға арналған көп мақсатты гамма-қондырғының мүмкіндіктері сипатталған.

MULTI-PURPOSE GAMMA FACILITY FOR RADIATION TECHNOLOGIES AND STUDIES OF RADIATION IMPACT ON MATERIAL STRUCTURE AND PROPERTIES

Zh. R. Zhotabayev

National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan

The article describes capabilities of the multi-purpose gamma facility for practical application of radiation technologies based on radioactive isotope gamma-radiation impact on various substances (food and agricultural stuff, medical tools and materials, industrial materials).

УДК 574.4

КОМПЛЕКС ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ В ИЗУЧЕНИИ РАДИОЭКОЛОГИЧЕСКОЙ СИТУАЦИИ КАЗАХСТАНА

Кадыржанов К.К., Солодухин В.П., Казачевский И.В., Лукашенко С.Н., Хажекбер С., Чумиков Г.Н., Князев Б.Б., Пивоваров С.П., Якушев Г.М., Верещак М.Ф., Чакров П.В., Платов А.В.

Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

В течении последних лет, при активной поддержке со стороны Международных организаций (МАГАТЭ, МНТЦ, НАТО и др.), в Институте ядерной физики НЯЦ РК (ИЯФ НЯЦ РК) создана и развита комплексная аппаратурно-методическая база, обеспечивающая решение множества разнообразных задач, связанных с радиационным мониторингом и исследованием радиоэкологической ситуации в различных регионах Казахстана. Развит новый методологический подход для изучения уровня и характера радионуклидной загрязненности Семипалатинского испытательного полигона (СИП). Методология радиоэкологических исследований и развитая аппаратурно-методическая база широко используется для изучения форм, структуры, динамики изменения радионуклидного загрязнения СИП, полигона "Азгир", объектов "Лира" и других мест проведения ядерных испытаний. Проводятся работы по радиационному мониторингу бассейна р. Сырдарья и объектов "Лира".

Введение

Научно-исследовательские работы по освоению, развитию и совершенствованию ядерно-физических методов анализа в ИЯФ НЯЦ РК проводятся уже более 40 лет. За столь длительный период времени в институте был накоплен солидный аналитический опыт в области ядерно-физических методов анализа, таких как активационный анализ, рентгенофлуоресцентный анализ и атомно-эмиссионную спектроскопию с индуктивно-связанной плазмой.

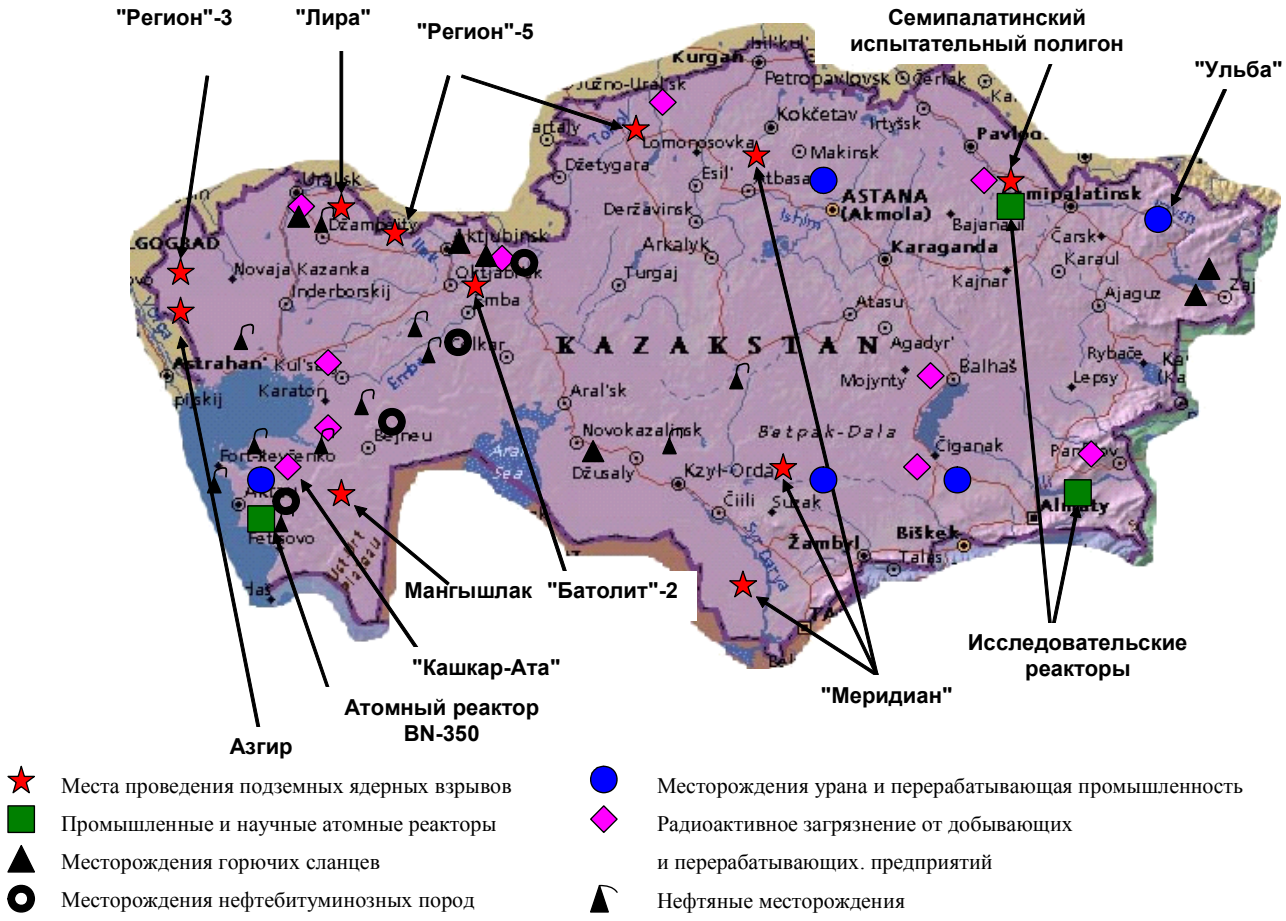
После прекращения в 1991 г. на Семипалатинском испытательном ядерном полигоне (СИП) испытаний ядерного оружия остро встал вопрос об изучении радиоэкологической ситуации на полигоне. В настоящее время известно [1-3], что на территории Казахстана за период с 1949 г. было проведено более 500 ядерных взрывов общей мощностью более 16 мегатонн. Большинство из них (470 взрывов) было осуществлено на СИП, остальные (37 взрывов) – на разных территориях республики.

В этот же период в республике интенсифицировались работы по разведке и добыче нефти и других ископаемых углеводородов. В настоящее время активно осваиваются новые месторождения нефти на шельфе Каспийского моря, ранее открытые месторождения Тенгиз, Карачаганак и ряд других. Прогнозные запасы этого ценного ископаемого в Республике оцениваются в несколько миллиардов тонн. Вместе с тем известно, что процесс нефтедобычи сопровождается выносом на поверхность значительного количества радиоактивных осадков, главным образом сконцентрированных на поверхности насосно-компрессорных труб. Активность этих отходов в некоторых местах нефтедобычи представляет реальную угрозу для здоровья обслуживающего персонала.

Весьма острой является проблема радиационного состояния территорий прилегающих к предприятиям атомно-энергетического комплекса, выведенных из эксплуатации после развала СССР. Это, в первую очередь, реактор на быстрых нейтронах в Актау и ряд уранодобывающих предприятий.

На рисунке 1 указаны месторождения углеводородов и урана, места проведения ядерных испытаний и отдельных объектов Казахстана, на которых использовались ядерные устройства и технологии. Перечисленные обстоятельства вызвали острую необходимость постановки объективных и всесторонних радиоэкологических исследований.

С середины 90 годов при поддержке международных организаций (МАГАТЭ, МНТЦ и др.) в ИЯФ НЯЦ РК интенсивно развивается комплексная аппаратурно-методическая база, обеспечивающая всестороннее решение задач, связанных с исследованием радиоэкологической ситуации в Казахстане [4,5]. Настоящая статья посвящена краткому описанию этих методов и их особенностей, а также возможностей их применения для решения широкого спектра радиоэкологических задач. При этом радионуклидный анализ, как основной, представлен наиболее детально.



Места проведения подземных ядерных взрывов
Промышленные и научные атомные реакторы
Месторождения горючих сланцев
Месторождения нефтебитуминозных пород
Месторождения урана и перерабатывающая промышленность
Радиоактивное загрязнение от добывающих и перерабатывающих. предприятий
Нефтяные месторождения

Рисунок 1. Месторождения органических ископаемых и места радиоактивных загрязнений на территории Республики Казахстан

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Базовыми установками для радиоэкологических исследований в ИЯФ НЯЦ РК являются: изохронный циклотрон У-150, ускоритель каскадный перезарядный УКП-2 тяжелых ионов, атомный реактор ВВР-К, комплекс спектрометрической аппаратуры, ЭПР-спектрометр "Брюкер" ESP-300E, ЯГР-спектрометр СМ2201, электронный микроскоп AMRAY 1200, атомно-эмиссионный спектрометр JY-70P. Методический комплекс включает в себя:

- радионуклидный анализ (инструментальный, радиохимический);
- элементный анализ: активационный анализ (АА), рентгенофлуоресцентный анализ (РФА);
- масс-спектрометрия (МС);
- ЭПР-спектрометрия;
- ЯГР-спектрометрия;
- электронная микроскопия (ЭМ);
- PIXE с микрозондом.

Радионуклидный анализ включает в себя альфа, бета и γ-спектрометрию искусственных и естественных радионуклидов. Спектрометрия обеспечена двумя α-спектрометрами "Canberra" 7401 (с двумя и восемью камерами), жидкосцинтилляционным β-спектрометром TriCarb 3100 ("Packard BioScience"), десятью γ-спектрометрами с полупроводниковыми детекторами из сверхчистого германия коаксиального, планарного и колодезного типов, включая широкодиапазонные детекторы большого активного объема и планарные детекторы большой активной площади: "Ortec" GEM-20180, Ortec" GMX-20180, "Ortec" GLP-25325, "Canberra" GX-1520, "Canberra" GLP-1010R, "Canberra" BE2020.

Инструментальный анализ включает прежде всего γ-спектрометрическую методику анализа образцов почв и донных отложений. Эта методика, предусматривающая измерение образцов на γ-спектрометрах планарного и коаксиального типов, позволяет определять концентрации искусственных - ^{241}Am, ^{137}Cs, ^{152}Eu, ^{154}Eu, ^{60}Co, и естественных радионуклидов уранового (^{234}Th, ^{226}Ra, ^{214}Pb, ^{214}Bi, ^{210}Pb), ториевого (^{228}Ac, ^{224}Ra, ^{212}Pb, ^{212}Bi, ^{208}Tl), актиноуранового (^{235}U, ^{227}Th) рядов и ^{40}K. Обработка спектрометрической информации осуществляется на персональных компьютерах. Основой обработки является комплекс программ, разработанных в ИЯФ [6]. Кроме того, для исследования образцов с мест

проведения ядерных испытаний была создана и в течение ряда лет успешно применяется методика прямого определения суммы изотопов плутония в почве по рентгеновскому излучению [7]. Гамма-спектрометрическая методика позволяет устанавливать концентрации искусственных радионуклидов с пределом их определения 0.5 Бк/кг (для ^{241}Am – 1 Бк/кг, $^{238+239+240}$Pu – 150-200 Бк/кг) и погрешностью 5-7 %. Для большинства естественных радионуклидов предел определения составляет 3-5 Бк/кг, для ^{40}K – 50 Бк/кг. Гамма-спектрометрический анализ воды в основном проводится инструментальным методом по той же схеме. В отдельных случаях, для достижения большей чувствительности определения радионуклидов образцы воды подвергаются специальной предварительной подготовке, включающей процедуры упаривания, концентрирования или осаждения со специальными носителями. Таким способом подготовленные образцы, как правило, измеряются на детекторе колодезного типа. Предел определения большей части радионуклидов в этих случаях достигает нескольких мБк/л.

При исследовании радионуклидного состава проб воды из мест проведения ядерных испытаний в настоящее время в Институте широко используется метод определения β-излучающих радионуклидов по черенковскому излучению и трития по β-излучению. Этот метод анализа основан на использовании жидкосцинтилляционного спектрометра и позволяет определять концентрации ^{90}Sr и трития в воде без специальной предварительной подготовки. Предел определения при этом составляет 1-2 Бк/л для ^{90}Sr и 5 Бк/л для трития.

Ряд проведенных международных межлабораторных сравнений и профессиональных тестов, организованных МАГАТЭ показал хорошую сходимость результатов инструментального анализа с данными других лабораторий или сертифицированными данными.

Радиохимический метод анализа. Разработка радиохимических методов была связана в первую очередь с невозможностью количественного определения ряда искусственных радионуклидов в объектах окружающей среды инструментальным методом либо из-за их малых концентраций, либо из-за малых количеств анализируемых объектов. Широкий перечень различных задач в процессе радиоэкологических исследований требует высокочувствительного определения искусственных радионуклидов в таких объектах окружающей среды как вода, растения, почвы, биологические материалы, а также отдельные фракции почвы и горячие частицы.

Эти задачи были решены в результате разработки комплекса методик радиохимического определения $^{239+240}$Pu, ^{137}Cs и ^{90}Sr [8]. В основе этих методик лежит полное разложение материала образца и последовательное хроматографическое выделение анализируемых нуклидов. Методики включают процедуры соосаждения, очистки от мешающих нуклидов, а для анализа образцов воды концентрирование из больших объемов (до 30 л). Предел определения $^{239+240}$Pu в образцах почв и донных отложений достигает 0.05 Бк/кг, для ^{90}Sr – 5 Бк/кг. Для образцов воды предел определения $^{239+240}$Pu достигает 0.05 мБк/л, для ^{90}Sr – 1.5 мБк/л, для ^{137}Cs – 1.0 мБк/л. Участие в ряде организованных МАГАТЭ профессиональных тестах по радиохимическому определению искусственных радионуклидов в образцах окружающей среды показало хорошее качество проведения анализа.

Разработанные методики радионуклидного анализа активно и широко используются при решении практически всех задач в радиоэкологических исследованиях.

Элементный анализ. Методы элементного анализа в ИЯФ НЯЦ РК развиваются более 40 лет и хорошо освоены. Методики, используемые в радиоэкологических и экологических исследованиях не имеют принципиальных отличий от ранее разработанных [4,5]. В связи с этим в настоящем разделе приведено только краткое описание схемы анализа и основных устройств.

Нейтронно-активационный анализ используется для определения микроэлементного состава образцов окружающей среды. Образцы массой 0.2 - 0,5 г облучаются в канале реактора ВВР-К в течение нескольких часов потоком нейтронов $(10^{12}\text{-}10^{13})\cdot см^{-2}\cdot с^{-1}$. Измерения наведенной активности образцов проводятся в несколько этапов на γ-спектрометрах коаксиального и планарного типов. Такая схема анализа позволяет определять более 25 элементов с пределом определения 0.01 – 0.1 μg/g. Имеется большой арсенал методических и аппаратурных возможностей (предварительное концентрирование, радиохимическая сепарация, различные варианты активации тепловыми и эпитермальными нейтронами, анализ по короткоживущим радионуклидам с использованием пневмопочты и т.д.) для расширения, в случае необходимости, этого списка [9-10].

Рентгенофлуоресцентный метод анализа используется в основном для определения макросостава образцов окружающей среды и осуществляется на установке, включающей в себя ампульный источник рентгеновского излучения ^{109}Cd и спектрометр с полупроводниковым детектором. Обработка спектров проводится по разработанной в ИЯФ программе, позволяющей разлагать сложные рентгеновские спектры и учитывающей поглощающие характеристики образца. Методика позволяет проводить определение 10-15 элементов с пределом определения 1-10 мкг/г. Отдельные анализы выполняются на установке с мощной рентгеновской трубкой (W = 1 кВт) с использованием различных переизлучателей (Fe, Cu, Zn, Mo, Cd). Такой прием позволяет снизить предел определения отдельных элементов до 0.1 мкг/г [11].

Помимо перечисленных методов в ИЯФ имеется атомно-эмиссионный спектрометр с индуктивно-связанной плазмой GY-70P, который применяется для анализа воды (в инструментальном варианте метода) и других объектов окружающей среды (с предварительным переводом материала пробы в жидкую фазу).

Результаты элементного анализа используются для определения содержания токсичных загрязнителей (в частности, тяжёлых металлов) практически во всех объектах окружающей среды и обнаружения корреляций между отдельными элементами и радионуклидами в образцах почвы при изучении фракционных и магнитных свойств.

Ядерная гамма - резонансная (ЯГР) спектроскопия (эффект Мессбауэра). Еще на начальной стадии радиоэкологических исследований в ИЯФ, при изучении отдельных фракции образцов почвы из наиболее загрязненных участков, был обнаружен интересный эффект. Практически весь америций и плутоний оказались сосредоточенными в, так называемой, магнитной фракции (выделенной путем обработки пробы почвы постоянным магнитом). В связи с этим была поставлена задача по изучению в почве СИП форм и состояния железа и его взаимосвязи с продуктами ядерных испытаний. Наиболее перспективным методом идентификации гипергенных соединений железа является ядерный гамма-резонанс. С его помощью можно определять железосодержащие минералы и их относительные содержания в отдельных фракциях, а также соотношение между формами железа различной валентности.

Измерения мессбауэровских спектров проводятся на спектрометре СМ2201 [7,8]. Управление спектрометром, обработка и отображение спектрометрической информации проводятся с помощью компьютера. В качестве источника γ-квантов используется мессбауэровский источник ^{57}Co активностью ~ 1 мКи.

Электронная парамагнитнорезонансная (ЭПР) спектроскопия. Метод ЭПР обладает высокой чувствительностью к регистрации соединений железа. При этом имеется возможность разделения ферромагнитной и парамагнитной фракций, а также оценки симметрии окружения парамагнитных комплексов. Отсюда следует, что использование данных ЭПР-спектроскопии может способствовать пониманию природы и форм нахождения радионуклидов в изучаемых объектах. Кроме того, этот метод может быть использован для "реконструкции радиационных нагрузок".

Для исследования почв и их фракций активно используются современные ЭПР-спектрометры ESP 3OOE фирмы "Брюкер" и ЭПР10-mini, оснащенные компьютерами и программами по обработке спектров ЭПР. В процессе методических исследований изучено влияние магнитной неоднородности исследуемых образцов почвы СИП и их отдельных фракций на резонансное поглощение.

Масс-спектрометрия. В ряду радионуклидных загрязнителей особое место занимают трансурановые элементы (плутоний и америций), т.к. они характеризуются высокой радиотоксичностью. Использование традиционных методов радионуклидного анализа при изучении отдельных фрагментов почвы вызывает определенные затруднения, связанные с ограничением по абсолютной чувствительности (предел определения ~ n-10^{-11} г). Кроме того, определение изотопного состава в ряде случаев не доступно для этих методов, в частности раздельное определение ^{240}Pu и ^{239}Pu. Вместе с тем такая задача вполне решаема методами масс-спектрометрии, характеризующихся высокой чувствительностью по отношению к этим элементам (предел определения ~ n-10^{-14} г) и позволяющих определять их изотопы в отдельности.

Микрозондовые методы. В процессе изучения радионуклидного состава образцов почвы, отобранных из различных участков СИП, был установлен факт значительной неравномерности распределения радионуклидов по объему образцов. Дальнейшие исследования выявили наличие, так называемых «горячих частиц» - мельчайших крупинок < 100 μm с высокой концентрацией радионуклидов. Информация о структуре этих частиц и формах нахождения в них радионуклидов в значительной степени способствует решению вопроса о формах нахождения радионуклидов в почве СИП. В связи с этим для изучения микроструктуры и элементного состава горячих частиц были привлечены методы электронной микроскопии с локальным элементным анализом и PIXE (Proton Induced X-ray Emission). В варианте микро-PIXE используется жестко сфокусированный пучок (~1-50 μm), что создает возможность для изучения пространственного распределения элементов на поверхности изучаемого объекта. В ИЯФ НЯЦ РК метод PIXE реализован на базе тандем-ускорителя УКП-2-1 с ускоряющим напряжением до 1 МВ.

Метод электронной микроскопии позволяет получать изображение поверхности с разрешением до 10 nm и очень большой глубиной резкости, т.е. позволяет детально исследовать морфологию частиц и различные неоднородности их структуры (поры, трещины, включения разных фаз) в широком интервале увеличений - от единиц до десятков тысяч. Чрезвычайно малый размер электронного зонда дает возможность регистрировать спектры характеристического рентгеновского излучения с участка размером 1×1 μm и, таким образом, достаточно корректно определять элементный состав весьма малых участков исследуемых объектов.

Электроннозондовые исследования проводятся на растровых микроскопах Philips SEM 515 с энергодисперсионным анализатором LINK AN 10000/85

и JCXA 733 с волновым рентгеновским спектрометром. В настоящее время осваивается электронный микроскоп Amray 1200 со спектрометром ANS-400.

Заключение

В ИЯФ НЯЦ РК создана и интенсивно развивается современная комплексная аналитическая база, включающая как традиционные так и нетрадиционные методы анализа радионуклидного, а также микро- и макроэлементного состава объектов окружающей среды. Этот аналитический комплекс используется для проведения широкомасштабных радиоэкологических исследований, охватывающих практически всю территорию Казахстана. Основными результатами этих исследований, полученных в ИЯФ НЯЦ РК, являются следующие [12]:

- Создана инструментальна база для радиоэкологических исследований, включающая различные методы анализа;
- Предложена методология изучения мест проведения ядерных испытаний;
- Изучена корреляция между типами ядерных испытаний и их радиоэкологическими последствиями;
- Проведена характеризация радионуклидного загрязнения СИП, объектов "ЛИРА", полигона "Азгир" и некоторых других объектов;
- Разработаны предложения по детальным исследованиям и радиационной реабилитации наиболее загрязненных участков СИП;
- Предложена и задействована система радиационного мониторинга бассейна р. Сырдарья, объектов "ЛИРА" и прилегающих к ним территорий.

Литература

1. Ядерные испытания СССР. М., 1997, 304 с.
2. Андрюшин И.А. и др. Ядерные испытания СССР. Гидроядерные эксперименты. Инвентаризация затрат плутония. РФЯЦ-ВНИИЭФ, ФТИ, Саров, 1998.
3. Булатов В.И. Россия радиоактивная. ЦЕРИС, Новосибирск, 1996, 266 с.
4. Kadyrzhanov K.K., Solodukhin V.P., Kazachevskiy I.V. e.a. Techniques Used at the INP NNC RK for Studying Soil Probes and Soil Fragments at SNTS. "Nuclear Physical Methods in Radioecological Investigations of Nuclear Test Site". NATO Science Series, 2000. p. 17 - 42.
5. Kadyrzhanov K.K., Khazhekber S., Kazachevskiy I.V, Lukashenko S.N., Solodukhin V.P. Characterization of Radionuclides Contamination at SNTS Territory. In "Nuclear Physical Methods in Radioecological Investigations of NTS". NATO Science Series. 2000. P.75-87.
6. Kazachevskiy I.V., Knyazev B.B., Kashirskiy V.V., Gabdulin R.M. Calculation of absolute efficiency in a gamma-spectrometry analysis. 3rd International Conference "Nuclear and Radiation Physics", 4-7 June 2001, Almaty, Vol. 3, p.214-219.
7. Knyazev B.B., Kazachevskiy I.V., Solodukhin V.P., Lukashenko S.N., Knatova M.K., Kashirskiy V.V. Instrumental Method of the Plutonium Determination. 3rd International Conference "Nuclear and Radiation Physics", 4-7 June 2001, Almaty, Vol. 3, p.126-137.
8. Kazachevskiy I.V., Lukashenko S.N., Chumikov G.N., Smirin L.N., Solodukhin V.P.,. Khazhekber S., Berdinova N.M., Ryazanova L.A., Bannyh V.I., Muratova V.M. Combined Radiochemical Procedure for Determination of Plutonium, Americium and Strontium-90 in the Samples from SNTS. Czech. J. Phys., 48 (1998), 69-84.
9. Solodukhin V.P., Kabirova G.M., Smetannikov V.V. Neutron Activation Analysis Possibilities for the Elemental Composition Research in Oil-Shale, Oil-Bituminous Rocks, Petroleum and their Fractions. Proceedings International Conference on Oil Shale and Shale Oil. Beijing China. Chemical Industry Press, 1988, p.136.
10. Sokol'sky V.V., Solodukhin V.P., Kazachevskiy I.V. Main Trends in Activation Analysis in Kazakhstan. IV International Conference on Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry. Kailua-Kona, Hawaii, 1997, p. 131.
11. Solodukhin V.P. "Nuclear-physical methods of analysis in oil geology and industry of Kazakhstan". J.Radioanal. Nucl. Chem. 234 (1998) 101-105.
12. Kadyrzhanov K.K., Tuleushev A.Zh., Lukashenko S.N., Solodukhin V.P., Kazachevskiy I.V., Khazhekber S. Radioecological Researches in INP NNC RK (Almaty). Radionuclides and Heavy Metals in Environment. NATO Science Series. Series IV: Earth and Environmental Series – Vol. 5, p.101-106.

ҚАЗАҚСТАНДАҒЫ РАДИОЭКОЛОГИЯЛЫҚ ЖАҒДАЙДЫ ЗЕРТТЕУДЕГІ ЯДРОЛЫҚ-ФИЗИКА ӘДІСТЕРІНІҢ ЖИЫНТЫҒЫ

Қадыржанов Қ.Қ., Солодухин В.П., Казачевский И.В., Лукашенко С.Н., Қажыәкпар С., Чумиков Г.Н., Князев Б.Б., Пивоваров С.П., Якушев Г.М., Верещак М.Ф., Чакров П.В., Платов А.В.

ҚР Ұлттық Ядролық Орталығы, Ядролық Физика Институты, Алматы, Қазақстан

Халықаралық ұйымдардың (Атом энергиясы жөніндегі Халықаралық Агентствосы, Халықаралық ғылым техника орталыгы, НАТО және тағы басқа) қолдауының арқасында соңғы жылдары ҚР Ұлттық Ядролық Орталығының Ядролық Физика Институтында аппаратуралық және әдістемелік негізі орнатылып, ары қарай дамуда. Бұл Қазақстанның әртүрлі аймақтарындағы радиациялық бақылау, радиоэкологиялық жағдайды зерттеуге байланысты көптеген мәселелерді шешуді қамтамасыз етеді. Семей сынақ полигонның

радионуклидбен ластану деңгейі және ерекшелігін зерттеуде жаңа әдістеме дамыған. Радиоэкологиялық зерттеу жүргізу әдістемесі, дамытылған аппаратура және әдістеме жыйынтығы Семей сынақ полигонны, Азғыр полигоны, Лира және басқа да жерлерде жүргізілгён сынақтардан пайда болған радионуклиттік ластану өзгерісін, формасын, құрылысын зерттеуде кең көлемде пайдаланылуда.

COMPLEX OF NUCLEAR – PHYSICAL METHODS FOR INVESTIGATION OF RADIOECOLOGICAL SITUATION IN KAZAKHSTAN

K.K. Kadyrzhanov, V.P. Solodukhin, I.V. Kazachevskiy, S.N. Lukashenko, S. Khazhekber, G.N. Chumikov, B.B. Knyazev, S.P. Pivovarov, G.M. Yakushev, M.Ph. Vereshak, P.V. Chakrov, A.V. Platov

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

During the last years with active support of international organizations (IAEA, ISTC, NATO and others) there was created and developed in the Institute of Nuclear Physics (INP) NNC RK the complex apparatus-methodical basis for solution of a large number of various problem related to radiation monitoring and study of radioecological situation in the regions of Kazakhstan. It was also developed a new methodological approach to the study of rate and character of contamination with radionuclides at former Nuclear Test Sites (NTS). The methodology of radioecological investigation and the developed apparatus-methodical basis are widely used to study forms, structures and behavior of variability of radionuclide contamination at the Semipalatinsk NTS, "Azgir" Test Site, "Lira" facilities and of other places where nuclear tests took place. The works on the radiation monitoring of the "Syrdarya" river basin are performed.

УДК 539.12.17

РАЗРАБОТКА ТЕХНОЛОГИИ И ИЗГОТОВЛЕНИЕ ИСТОЧНИКОВ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ РАДИОИЗОТОПА CD-109

Желтов Д.А., Зиновьева М.В., Князев А.М., Карташов Я.В., Лысухин С.Н., Смайлов Е.К.

Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Разработана методика изготовления закрытых источников рентгеновского излучения радиоизотопа Cd-109, предназначенных для работы в установках рентгенофлуоресцентного анализа. В будущем, методика будет рассматриваться как один из вариантов мелкосерийного производства источников в Институте ядерной физики НЯЦ РК. Изготовлено и передано в лаборатории института 4 источника.

Благоприятные ядерно-физические показатели радионуклида ^{109}Cd (ЭЗ - 100%, $T_{1/2}$=462 суток, гамма-переход - 88 кэВ, РИ - 22 кэВ) обусловили его широкое техническое использование, в частности, в качестве источника рентгеновского излучения в рентгенофлуоресцентном анализе (РФА).

Среди методов получения однородных радиоактивных источников на металлической подложке относительно простым и удобным является катодное осаждение из водных растворов. Обычно для электроосаждения индикаторных количеств изотопов элементов металлов используют сильнощелочную среду и плотности тока порядка сотен мА/см^2 [1,2]. При прочих равных условиях скорость осаждения определяется соотношением [3]:

$$n_t = n_\infty \left(1 - e^{-\frac{kAt}{V}}\right)$$

где n_t - процент осаждения за время t; n_∞ - процент осаждения при достижении насыщения; A - площадь катода; V - объем электролита; k - эмпирическая константа, зависящая от условий осаждения.

Из приведенной формулы следует, что при небольшой площади катода (в данном случае 0.125 см^2) для сокращения времени электролиза необходим по возможности малый объем электролита.

Исходя из этого, была разработана технологическая схема установки для электроосаждения Cd-109, изображенная на рисунке 1, ключевой деталью которой является миниэлектролизная ячейка, имеющая общий объем 3 мл, с оригинальной системой «сброса» катода (серебряный диск ∅ 5,2 мм). Данная схема позволяет проводить процесс электролиза с круговой циркуляцией электролита и одновременной откачкой газов из прикатодной области, что обеспечивает перемешивание электролита и исключает газовую экранизацию катода.

В качестве электролита был выбран концентрированный раствор аммиака (pH>13), материал подложки - серебро, анод - платиновая проволока диаметром 1 мм, диаметр пятна осаждения 4 мм.

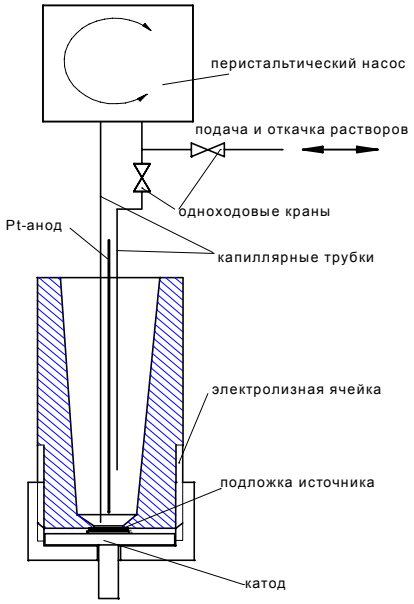


Рисунок 1. Технологическая схема установки для электроосаждения безносительного Cd-109 на металлические подложки

С целью определения и отработки параметров процесса электролиза проводились контрольные осаждения Cd-109 на серебряные диски. Для экспериментов использовался 2 М азотнокислый раствор Cd-109 с радионуклидной чистотой ≥ 99,99% и содержанием примесей Ag, Fe, Cu в сумме ≤ 1мкг/мл, с объемной активностью ~ 1 МБк/мл. Предварительная подготовка подложки заключалась в последовательной промывке дистиллированной водой, раствором 1 М NaOH, ацетоном, раствором 3 М HNO_3. Ячейка перед подачей в неё электролита промывалась 25%-ным раствором аммиака.

Исходный раствор Cd-109 упаривался «до капли», кондиционировался 25%-ным раствором аммиака (pH>13) и через капилляр подавался в ячейку (Рис. 1). Рабочий раствор электролита находился в пределах 2 мл, pH и объем электролита, ввиду его разогрева и интенсивного газовыделения в течение процесса, корректировались до указанных величин.

На рисунке 2 представлены зависимости выхода Cd-109 на подложку от времени при различных

плотностях тока. Эксперименты проводились в динамическом режиме, т.е. для каждой зависимости из ячейки отбирались пробы через определенные промежутки времени без снятия наложенного тока. Активность проб измерялась на спектрометре “EURISYS MESURES” с коаксиальным Ge-детектором по гамма-линии 88 кэВ.

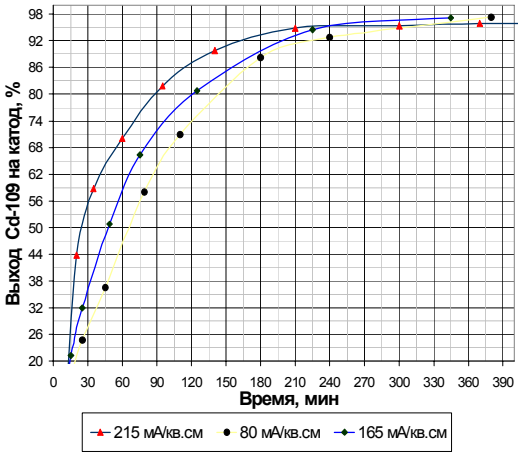


Рисунок 2. Выход Cd-109 на подложку в зависимости от времени при различных плотностях тока

Как видно из рисунка 2, максимальный выход Cd-109 (“насыщение” катода) составляет 95-96%. Исходя из полученных данных, было принято, что выход Cd-109 на катоде на уровне 94 % является достаточным для изготовления твердотельных источников. Поэтому, учитывая малую кривизну полученных зависимостей в области максимального выхода, методом линейной интерполяции были получены (Табл.) приблизительные значения времен достижения 94%-го выхода при различных плотностях тока.

Таблица

Плотность тока, мА/см^2	215	165	80
Время 94%-го выхода, мин	197,9	221,6	276,9

На рисунке 3 представлено графическое изображение полученных данных. Исходя из рисунка можно заключить, что применение малых плотностей тока (<100 мА/см^2) ведет к неоправданному увеличению времени процесса. Применение же больших плотностей тока (>200 мА/см^2), как было установлено, ведет к значительному разогреву и разбрызгиванию электролита, что также неприемлемо. Поэтому, был выбран оптимальный диапазон плотности тока для проведения процесса - 120÷180 мА/см^2. Полученная зависимость была использована для приблизительной оценки необходимого времени электролиза в зависимости от выбранной плотности тока.

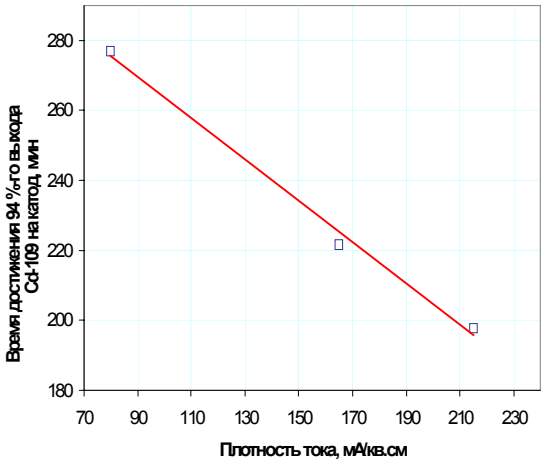


Рисунок 3. Время достижения 94%-го выхода Cd-109 на серебряный диск при различных плотностях тока

Однако установлено, что после снятия наложенного тока, при откачивании отработанного электролита, происходит значительное саморастворение осажденной активности Cd-109 и фактический максимальный выход составлял на 20 -30 % ниже.

Также установлено, что имеет значение материал электролизной ячейки. Были испытаны ячейки из органического стекла и фторопласта-4. В случае органического стекла была отмечена значительная сорбция (до 20 %) Cd-109 на его поверхность из сильнощелочной среды рабочего электролита, в случае же фторопласта-4 сорбция не превышала 2 %.

С учетом полученных данных, были выбраны оптимальные, на наш взгляд, технологические параметры процесса осаждения Cd-109 для изготовления источников РФА.

- Плотность катодного тока – 120÷180 мА/см^2;
- Время проведения процесса ≈ 4 часа;
- Рабочий объем электролита до 2 мл;

Активная часть источника представляет собой серебряный диск толщиной 400 мкм, диаметром 5,2 мм с активной зоной диаметром 4 мм (Рис. 4).

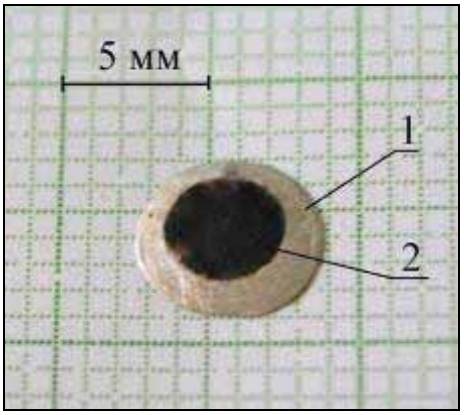


Рисунок 4. Активная часть источника Cd-109 для РФА (1-Ag-диск диаметром 5,2 мм; 2-активная область диаметром 4 мм)

По ранее описанной технологии [4] из облученных серебряных мишеней было выделено 63 мКи Cd-109 и на опытной установке (Рис. 1) нами были изготовлены и переданы в лаборатории ИЯФ 4 источника Cd-109.

Серебряные диски с электроосажденным Cd-109 помещались в цилиндрический дюралюминиевый корпус диаметром и высотой по 8 мм с бериллиевым выходным окном, изображенный на рисунке 5. Герметизация корпуса источника осуществлялась эпоксидной смолой.

Измерение активности источников производилось на радиометре “CURIEMENTOR-2”, откалиброванном в соответствующей геометрии.

Контроль герметичности источников проводился иммерсионным методом по ГОСТ Р 50629-93.



Рисунок 5. Дюралюминиевый корпус источника Cd-109 с бериллиевым выходным окном

Литература

1. Коробков В.И., .Лукьянов В.Б. Методы приготовления препаратов и обработка результатов измерений радиоактивности/– М., –Атомиздат, 1973.
2. Пастухова З.В. //ПТЭ, –№6, –1962. –С.126.
3. Новгородов А.Ф. и др.// Радиохимия, –№ 6. –1964. –С. 73.
4. Сычиков Г.И., Князев А.М., Желтов Д.А. Городисская Н.М. Выделение изотопа Cd-109 из циклотронной серебряной мишени и получение источников рентгеновского излучения на его основе. Тез. докл. 3-й Международной конференции «Ядерная и радиационная физика» 4-7 июня 2001 г.– Алматы, 2001. –С.139–140.

РЕНТГЕНДІК СӘУЛЕЛЕР ШЫҒАРАТЫН CD-109 РАДИОИЗОТОПЫНЫҢ КӨЗДЕРІН ДАЯРЛАУ ЖӘНЕ ТЕХНОЛОГИЯСЫН ЖАСАУ

Желтов Д.А., Зиновьева М.В., Князев А.М., Карташов Я.В., Лысухин С.Н., Смайлов Е.К.

ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан Республикасы

Рентгенді флуоресценттік талдау қондырғысында жұмыс істеуге арналған,рентгендік сәулелер шығаратын Cd-109 радиоизотопының жабық көздерін даярлаудың әдісі жасалған. Болашақта бұл әдіс ҚР ҰЯО Ядролық физика институтында көздерді аз көлемде өндірудің бір бағыты ретінде қарастырылады. Институттың лабораторияларына төрт көз дайындалып берілген.

TECHNOLOGIES DEVELOPMENT AND CD-109 RADIOISOTOPE X-RAY EMISSION SOURCES FABRICATION

D.A. Zheltov, M.V. Zinov’eva, A.M. Knyazev, Y.V. Kartashov , S.H. Lysuhin , E.K. Smailov

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

We confirm hereby that the production method of X-ray sources based on radioisotope Cd-109 assigned for the operation in the roentgen fluorescent analysis facilities is developed. In future this method will be considered as on of the version of sources short-run production in the Institute of Nuclear Physics NNC RK. Four sources were produced and released in the Institute laboratories.

УДК 621.039.74

ПЕРЕВОЗКА ВОСЬМИМЕСТНОГО ТРАНСПОРТНО-УПАКОВОЧНОГО КОМПЛЕКТА СОДЕРЖАЩЕГО ОТРАБОТАВШЕЕ ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО РУ БН-350 С ТОЧКИ ЗРЕНИЯ ЯДЕРНОЙ БЕЗОПАСНОСТИ

Тур Е.С., Айсабеков А.Ж.

Национальный ядерный центр Республики Казахстан, Курчатов

В настоящей работе приведены результаты расчета величин коэффициента размножения нейтронов ($k_{эфф}$) для восьмиместного металлобетонного контейнера содержащего чехлы с отработавшим ядерным топливом реакторной установки БН-350 Мангышлакского атомного энергокомбината. Для проведения расчётов использован код MCNP с системами констант ENDF/BVI, JEFF3.0 и JENDL3.3. Рассмотрены нормальные условия перевозки ТУК с чехлами, а также аварийные ситуации.

В настоящее время, отработавшее ядерное топливо реактора БН-350 Мангышлакского атомного энергокомбината (г. Актау, Республика Казахстан) упаковано в герметичные чехлы и подготовлено к вывозу для постоянного хранения на один из объектов Национального ядерного центра Республики Казахстан в город Курчатов Восточно-Казахстанской области. Конструкция чехлов разработана в ANL, чехлы изготовлены предприятием «Белкамит» (РК). Транспортный упаковочный комплект для перевозки чехлов разрабатывает КБСМ. Обоснование ядерной безопасности на этапе упаковки чехлов с отработавшим топливом выполнено специалистами ИАЭ НЯЦ РК, НЯЦ РК, МАЭК и ANL [1].

Процесс упаковки, перевозки и хранения отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) имеет четыре технических рубежа защиты от возникновения ядерноопасных ситуаций: контейнер с дистанционирующей решеткой, чехол, внутренняя корзина чехла и герметизирующие оболочки каждого ТВЭЛ, препятствующих попаданию воды внутрь и способствующих дистанционированию топлива, и один организационный рубеж, ограничивающий массу делящегося материала в чехле.

В настоящей работе в приведены результаты расчетного обоснования ядерной безопасности транспортно-упаковочного комплекта (ТУК) при обращениях с чехлами с ОЯТ как при нормальных условиях эксплуатации, так и при возникновении аварийных ситуаций, когда преодолеваются несколько защитных рубежей.

- К нормальным условиям эксплуатации отнесены случаи, связанные с расположение рядом нескольких загруженных ТУК, нахождение ТУК с чехлами под дождем. В этих ситуациях сохранены все рубежи защиты.
- К аварийным ситуациям отнесены случаи, связанные с попаданием ТУК в воду, проникновением воды через защитные рубежи и/или случай возникновения пожара, когда преодолеваются несколько защитных рубежей.

Основная цель проведенных расчетов заключалась в определении степени влияния на ядерную безопасность ТУК дополнительного восьмого чехла в условиях нормальной эксплуатации и при возникновении аварийных ситуаций.

Расчеты $k_{эфф}$ проведены с помощью кода MCNP [2]. Библиотеки сечений для MCNP подготовлены кодом NJOY [3]. Использованы системы констант форматов ENDF/BVI, JEFF3.0 и JENDL3.3.

СИТУАЦИИ ПРИ ОБРАЩЕНИИ С ЧЕХЛАМИ

В работе [1] было показано, что наиболее критичными сборками являются “свежие” ТВС 2 типа (самый распространённый на БН-350 тип топливных ТВС, содержащий 127 твэлов) с обогащением по U^{235} 26,456% (упаковываются в шестиместные чехлы) и с обогащением по U^{235} 33% (упаковываются в четырехместные).

На этапе упаковки, при загрузке сборок в шестиместные чехлы, выполняется организационное защитное мероприятие, ограничивающее массу делящегося материала в чехле. Для шестиместного чехла это обеспечивается при загрузке не более трёх топливных сборок с обогащением 26,456%.

Для консервативности расчёта предполагается, что были допущены организационные ошибки, приведшие к загрузке шестиместных чехлов шестью топливными сборками 2 типа с обогащением по U^{235} 26,456%.

Для четырехместных чехлов не было ограничений на комбинацию загрузки топливных и экранных ТВС. Поэтому, применяя консервативный подход, предполагается, что четырехместные чехлы заполнены четырьмя топливными сборками 2 типа с обогащением по U^{235} 33%.

Поскольку всего имеется 15 сборок с обогащением 33%, только четыре четырёхместных чехла могут содержать такие ТВС, причём в одном чехле будет находиться одна ТВС с обогащением 26,456%.

Нормальные условия эксплуатации

1. Загруженный ТУК находится в воздухе на полубесконечном слое стали. Эта ситуация реализуется при перевозке ТУК на автомобиле или ж.д. платформе.
2. Загруженный ТУК находится на полубесконечном слое стали, окруженный водой плотностью до 1 г/см^3. Эта ситуация реализуется при перевозке ТУК на автомобиле или ж.д. платформе под сильным дождем.

3. Семь загруженных ТУК располагаются вплотную друг к другу в узлах треугольной решётки, на полубесконечном слое бетона, окруженные водой плотностью до 1 г/см^3. Эта ситуация реализуется при перегрузке ТУК или их хранении.

Аварийные ситуации

К аварийным ситуациям отнесены случаи последовательного отказа защитных рубежей – при попадании ТУК в воду вначале потеря герметичности контейнером, а затем потеря герметичности чехлами. Отметим, что защитные рубежи чехлов могут быть преодолены до упаковки ТУК и до перевозки. Например, из-за некачественной сварки на этапе упаковки вода может находиться в чехлах уже в настоящее время. Поэтому при анализе аварийных ситуаций необходимо рассмотреть, так же, случаи: а) нахождения воды внутри контейнера, при её отсутствии внутри чехлов и снаружи контейнера б) нахождения воды внутри чехлов, при её отсутствии вне чехлов и снаружи контейнера; в) нахождения воды внутри чехлов и снаружи контейнера, при её отсутствии вне чехлов; г) нахождения воды внутри и вне чехлов, при её отсутствии снаружи контейнера.

Также к аварийным ситуациям отнесён случай повышения температуры ТУК (например, при пожаре). Задано, что температура всех материалов ТУК достигает 800^{o}С, но плавления контейнера и его содержимого не происходит, т.е. геометрические формы деталей и их взаиморасположение сохраняются. Увеличение линейных размеров деталей и уменьшение их плотности в расчетах не учитывалось. Рассмотрены ситуации, которые могут произойти при тушении пожара и при попадании паров воды в центральную полость контейнера. Проведен расчет для четырёх конфигураций, когда в полости контейнера находятся пары воды с плотностью 1,0 г/см^3, 0,75 г/см^3, 0,5 г/см^3 и 0,25 г/см^3.

Расчёты проводились для двенадцати ситуаций:

1. Загруженный ТУК находится в бесконечном объеме воды. Контейнер сохранил свою герметичность. Эта ситуация реализуется при падении ТУК в воду, например при аварии на мосту через реку.
2. Загруженный ТУК находится на полубесконечном слое бетона в воде. Контейнер сохранил свою герметичность. Эта ситуация реализуется при нахождении груза на дне водоема.
3. Загруженный ТУК находится в бесконечном объеме воды. Контейнер потерял герметичность, вода заполнила внутреннюю полость, но чехлы сохранили свою герметичность.
4. Загруженный ТУК находится в бесконечном объеме воды. Контейнер и чехлы потеряли герметичность, и вода заполнила все их внутренние полости.
5. Загруженный ТУК находится в бесконечном объеме воды. В полости контейнера воды нет, но она есть в чехлах, и заполняет все их внутренние полости.
6. Загруженный ТУК находится в бесконечном объеме воды. В ТУК предполагается наличие паров воды.
7. Загруженный ТУК находится в воздухе. В контейнере находится вода, заполняющая внутреннюю полость, но чехлы сухие.
8. Загруженный ТУК находится в воздухе. В контейнере и чехлах находится вода, заполняющая все их внутренние полости.
9. Загруженный ТУК находится в воздухе. В полости контейнера воды нет, но она есть в чехлах, и заполняет все их внутренние полости.
10. Загруженный ТУК находится в воздухе. В ТУК предполагается наличие паров воды.
11. Загруженный ТУК находится в воздухе на полубесконечном слое бетона. Температура всех материалов 800^{o}С. Эта ситуация реализуется при пожаре.
12. Загруженный ТУК находится на полубесконечном слое бетона. Температура всех материалов 800^{o}С. Все пустоты заполнены водой плотностью 1,0 г/см^3, 0,75 г/см^3, 0,5 г/см^3 и 0,25 г/см^3. Такая ситуация реализуется при тушении пожара водой. Температура паров воды 100^{o}С.

КОНСТРУКЦИИ И РАСЧЕТНЫЕ КОНФИГУРАЦИИ ОСНОВНЫХ УЗЛОВ МОДЕЛИ

Конструктивные размеры и материальный состав ТВЭЛ, ТВС, четырёхместных и шестиместных чехлов принятые в модели взяты из работы [1].

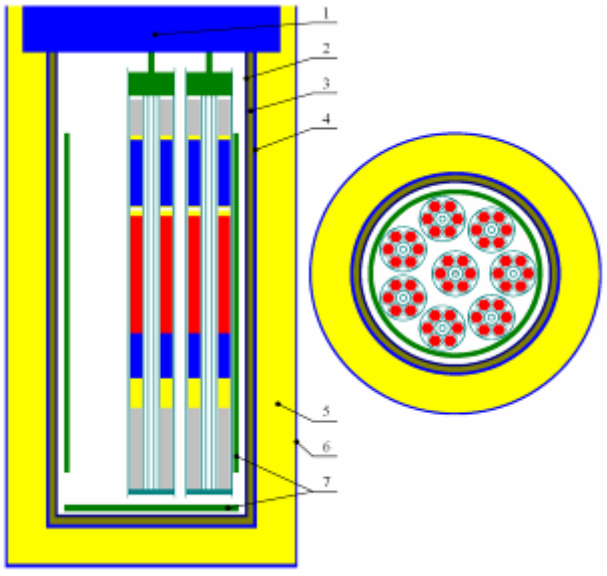


Рисунок 1. Расчетная конфигурация УКХ: 1 – крышка, 2 - стакан внутренний, 3 - наполнитель лёгкий, 4 - стакан силовой, 5 - наполнитель тяжёлый, 6 - стакан наружный, 7 - обечайка и днище дистанционирующей решетки

Поскольку конструкция, размеры и материалы восьмиместного упаковочного комплекта хранения находятся в стадии эскизной проработки, в расчётах использовалась модификация базового семиместного упаковочного комплекта хранения (УКХ). Модификация заключается в увеличении радиальных

размеров компонентов УКХ на 66,4 мм, при неизменных значениях толщин и высот.

Расчётная конфигурация восьмиместного УКХ приведена на рисунке 1.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

Увеличение числа чехлов в УКХ до восьми при проектировании новой модификации может затронуть два параметра:

- изменение радиуса решетки расположения чехлов;
- изменение толщины и материального состава стенки контейнера.

При этом возможен вариант совместного изменения этих параметров. Для оценки влияния этих изменений была выполнена серия расчетов коэффициента размножения системы в возможных диапазонах радиуса решетки (от 48 до 68 см) и материального состава отражателя (вода, бетон, сталь) для двух типов чехлов (восемь шестиместных или четыре четырёхместных и четыре шестиместных).

Были получены результаты, свидетельствующие о том, что

- наихудшим вариантом загрузки является загрузка ТУК восьмью шестиместными чехлами;
- материальный состав отражателя (смесь стали и бетона) слабо влияет на коэффициент размножения системы;
- основное влияние на коэффициент размножения оказывает радиус решетки, причём наихудшим вариантом ($k_{эфф}$=0,78201) является тесное расположение чехлов вплотную друг к другу на минимально возможном расстоянии - 48 см от центра.

Поскольку температура среды в чехлах находится в диапазоне (300 – 400) ºС, при попадании воды в полости ТУК может образоваться пароводяная смесь с широким диапазоном плотности. Воздействие изменения плотности воды на коэффициент размножения системы с решетками не является однозначным и требует проверки.

Поэтому также была выполнена серия расчётов коэффициента размножения ТУК с полостями, заполненными пароводяной смесью различной плотности для варианта с восьмью шестиместными чехлами и со стальным бесконечным отражателем.

Результаты расчётов показали, что

- Образование пароводяной смеси в полостях контейнера и чехлов резко увеличивает размножение нейтронов в системе.
- Образование пароводяной смеси в полостях чехла является наиболее опасным процессом.
- Наличие пароводяной смеси в чехлах (0,3 г/см^3) при практически полном отсутствии воды в полостях контейнера (0,05 г/см^3) является наиболее критичной ситуацией ($k_{эфф}$=0,92907).

Нормальные условия эксплуатации

Нормальные и аварийные ситуации рассматривались для модификации базового семиместного ТУК. Радиус расположения чехлов (48 см) и тип чехлов (восемь шестиместных), а также плотность пароводяной смеси выбраны из изложенных выше соображений, для получения наиболее консервативных результатов.

В таблице 1 представлены результаты расчета для нормальных условиях эксплуатации ТУК.

Таблица 1. Результаты расчета $k_{эфф}$ для нормальных условий эксплуатации

Расчетная конфигурация	$k_{эфф}$
ТУК на полубесконечном слое стали.	0,51315
ТУК на полубесконечном слое стали в бесконечном водяном отражателе.	0,51363
Семь ТУК на полубесконечном слое стали в бесконечном водяном отражателе.	0,51480

Аварийные ситуации

Результаты расчетов по сценариям аварийных ситуаций представлены в таблице 2.

Таблица 2. Результаты расчета $k_{эфф}$ для аварийных ситуаций

Расчетная конфигурация	$k_{эфф}$
ТУК в бесконечном водяном отражателе. Внутри ТУК воды нет.	0,51332
ТУК на полубесконечном слое бетона в бесконечном водяном отражателе. Внутри ТУК воды нет.	0,51499
ТУК в бесконечном водяном отражателе. Внутри контейнера вода. В чехлах воды нет.	0,62412
ТУК в бесконечном водяном отражателе. Внутри контейнера и в чехлах вода.	0,74881
ТУК в бесконечном водяном отражателе. Внутри контейнера воды нет. В чехлах вода.	0,83105
ТУК в бесконечном водяном отражателе. Внутри ТУК пары воды.	0,89945
ТУК в воздухе. Внутри контейнера вода. В чехлах воды нет.	0,62402
ТУК в воздухе. Внутри контейнера и в чехлах вода.	0,75084
ТУК в воздухе. Внутри контейнера воды нет. В чехлах вода.	0,83169
ТУК в воздухе. Внутри ТУК пары воды.	**0,90032**
ТУК в воздухе на полубесконечном слое бетона. Температура всех материалов 800°С.	0,28764
ТУК в воздухе на полубесконечном слое бетона. Температура всех материалов 800°С. Все пустоты заполнены водой плотностью 1,0 г/см^3. Температура паров воды 100°С.	0,45468
ТУК в воздухе на полубесконечном слое бетона. Температура всех материалов 800°С. Все пустоты заполнены водой плотностью 0,75 г/см^3. Температура паров воды 100°С.	0,42292
ТУК в воздухе на полубесконечном слое бетона. Температура всех материалов 800°С. Все пустоты заполнены водой плотностью 0,5 г/см^3. Температура паров воды 100°С.	0,39456
ТУК в воздухе на полубесконечном слое бетона. Температура всех материалов 800°С. Все пустоты заполнены водой плотностью 0,25 г/см^3. Температура паров воды 100°С.	0,36018

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализ результатов (таблицы 1 и 2) показывает:

- Коэффициент размножения нейтронов для УКХ, снаряженного восемью чехлами, не превышает нормативного ограничения в 0,95 при нормальных условиях эксплуатации и при рассмотренных аварийных ситуациях (без учета деформаций чехлов и решетки УКХ).
- До тех пор, пока в внутри ТУК нет воды, величина $k_{эфф}$ для одного ТУК не превосходит 0,51315.
- Величина $k_{эфф}$ почти не меняется при изменении обстановки снаружи ТУК. Действительно, при нахождении ТУК в воздухе или в воде, на слоях стали или бетона, или даже в окружении нескольких ТУК величина $k_{эфф}$ меняется слабо и не превосходит 0,51480.
- Величина $k_{эфф}$ начинает возрастать при появлении в расчетных конфигурациях воды. При заполнении водой внутренней полости ТУК, значение $k_{эфф}$ увеличивается с 0,51499 до 0,62412. А при заполнении водой ещё и чехлов, значение $k_{эфф}$ возрастает уже до 0,75084. Наиболее критичной является ситуация при образовании в полостях контейнера и чехлов пароводяной смеси. В ситуации с образование паров с плотностью 0,25-0,30 г/см^3 в чехлах и с плотностью 0-0,10 г/см^3 в полостях контейнера приводит к максимальному увеличению коэффициента размножения нейтронов в системе, равном 0,90032.
- При увеличении температуры материалов до 800^{o}C величина $k_{эфф}$ резко уменьшается и даже в наиболее критичном варианте не превышает 0,45468.

Выводы

1. При нормальных условиях работы УКХ с восьмью чехлами с ОЯТ kэфф не превосходит величины 0,51480.
2. В аварийных ситуациях с УКХ, снаряженного восьмью чехлами с ОЯТ kэфф не превосходит величины 0,90032.
3. Наличие пароводяной смеси в чехлах резко увеличивает размножение нейтронов в снаряженном УКХ.

ЛИТЕРАТУРА

1. Обращение с отработавшим топливом реактора БН-350. Анализ и обоснование безопасности на этапе упаковки. Заключительный отчет. Том 1, 2, НЯЦ РК, 2001 г.
2. Oak Ridge National Laboratory. "RSICC computer code collection, MCNP-4B. Monte-Carlo N-Particle Transport Code System", Contributed by Los Alamos National Laboratory. Los Alamos, New Mexico.
3. R. E. MacFarlane, D. W. Muir, “The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 91,” Los Alamos National Laboratory report, LA-12740-M (1994).

ЯДРОЛЫҚ ҚАУІПСІЗДІК ТҰРҒЫСЫНАН ШН-350 РҚ ӨҢДЕЛГЕН ЯДРОЛЫҚ ОТЫНЫ БАР СЕГІЗ ОРЫНДЫ КӨЛІКТІК БУЫП-ТҮЙІЛГЕН ЖИЫНТЫҚТЫ ТАСЫМАЛДАУ

Тур Е.С., Айсабеков А.Ж.

ҚР Ұлттық ядролық орталық

Бұл жұмыста Маңғышылақ атом энергокомбинатының өңделген ядролық отындық ШН-350 реакторлық қондырғылы конистрі бар сегіз орынды металл бетонды контейнерге арналған нейтрондардың (kэфф) көбею коэффициенті шамасының есептік нәтижелері берілген. Есеп жүргізу үшін ENDF/BVI, JEFF3.0 и JENDL3.3 константт жүйесімен бірге MCNP коды қолданылды. КБЖ тасымалдаудың қалыпты, сондай-ақ апаттық жағдайлары да қарастырылған.

TRANSPORTATION OF EIGHT-PACK TRANSPORTATION-PACKAGING CASK CONTAINING BN-350 SPENT NUCLEAR FUEL FROM THE NUCLEAR SAFETY VIEWPOINT

E.S. Tur, A.Zh. Aisabekov

National Nuclear Center RK

The effort presents results of calculations of neutron multiplication factor (k_{eff}) values for an eight-pack metal-concrete cask containing canisters with spent nuclear fuel of BN-350 reactor facility of Mangyshlak Atomic Energy Combine. For the purpose of calculations, MCNP code with constant systems ENDF/BVI, JEFF3.0 and JENDL3.3. was applied. Normal conditions of TPC with canisters and emergencies are considered.

УДК 621.039.74

ОЦЕНКА РАЗМЕРОВ САНИТАРНО-ЗАЩИТНОЙ ЗОНЫ ПЛОЩАДКИ ПЕРЕГРУЗКИ МЕТАЛЛОБЕТОННЫХ КОНТЕЙНЕРОВ С ОТРАБОТАВШИМ ЯДЕРНЫМ ТОПЛИВОМ РУ БН-350

Тур Е.С., Мукенева С.А.

Национальный ядерный центр Республики Казахстан, Курчатов

Приведены результаты расчёта дозовых полей создаваемых отработавшим ядерным топливом РУ БН 350 перевозимом в семиместном металобетонном контейнере. Полученные результаты служат для оценки дозовой нагрузки на персонал и население при операциях связанных с перегрузкой контейнеров. Для проведения расчётов использован код MCNP.

Площадка перегрузки в городе Курчатове является структурной единицей в системе обращения с отработавшим ядерным топливом реактора БН-350. Функциональное назначение площадки состоит:

- в приеме и размещении железнодорожного состава с контейнерами;
- в перегрузке контейнеров с железнодорожных транспортеров на платформы автопоездов;
- в формировании и досмотре автоколонны.

Прибывающие и снаряженные металлобетонные контейнеры (МБК) являются протяженными источниками ионизирующего излучения, которые могут создавать вблизи своей поверхности поток излучения с мощностью дозы, в соответствии с нормативами [1], до 2мЗв/час. Вследствие этого, в соответствии с [2], площадка категорируется как радиационный объект, для которого должна быть назначена санитарно-защитная зона - территория вокруг источника ионизирующего излучения, на которой уровень облучения людей в условиях нормальной эксплуатации данного источника может превысить установленный предел для населения.

Таким образом, необходимость оценки размеров СЗЗ появляется уже на стадии проектных разработок, при составлении технического задания на проектирование для назначения территориальных размеров площадки.

Технология работ с МБК предусматривает участие персонала на всех этапах обращения с ними. При выполнении плановых и вынужденных остановок состава, на пункте перегрузки вблизи МБК начинаются работы персонала железной дороги и охраны. Для оценки воздействия излучения на персонал требуется знание пространственного распределения дозовых полей.

РАСЧЕТНЫЕ МЕТОДЫ И КОД

Для нахождения пространственного распределения мощности эффективной дозы фотонного излучения снаружи МБК, испускаемого продуктами деления и активации находящимися в ОТВС реактора БН-350, использовался расчетный код MCNP версия 4B с и библиотекой констант фотонов из набора библиотек DLC-189 [3]. Данный код основан на использовании метода Монте-Карло и непрерывных по энергии сечений, что является одним из достоинств программы. Вторым важным положительным свойством программы является то, что метод Монте-Карло не имеет геометрических ограничений.

Версия 4B кода MCNP была инсталлирована на компьютере Intel Pentium IV с операционной системой Linux (Red Hat Linux 9.0 “Shrike”). Все тестовые задачи, при инсталляции были решены программой безошибочно. Никаких специальных модификаций базового программного обеспечения сделано не было. Это дает право утверждать, что все специфические особенности базовой версии кода MCNP версии 4B, связанные с его верификацией, обоснованностью использования и контролю качества расчетов, относятся и к проделанным расчетам также.

Однако, поскольку в тестовых задачах нет ситуаций учитывающих такие эффекты как отражение γ-квантов от земной поверхности и их рассеивание в воздухе, в добавок к ним был выполнен расчёт по материалам эксперимента [4].

Сравнение результатов эксперимента и значений, рассчитанных кодом MCNP, показало их эквивалентность в пределах точности полученных экспериментальных данных.

КОНСТРУКЦИИ И РАСЧЕТНЫЕ КОНФИГУРАЦИИ ОСНОВНЫХ УЗЛОВ МОДЕЛИ

Конструктивные размеры и материальный состав ТВЭЛ, ТВС, четырёхместных и шестиместных чехлов принятые в модели взяты из работы [5].

Размеры и материалы компонентов упаковочного комплекта хранения (УКХ) взяты из чертежей разрабатываемых Конструкторским Бюро Специального Машиностроения РФ.

Расчётная конфигурация семиместного УКХ приведена на рисунке 1.

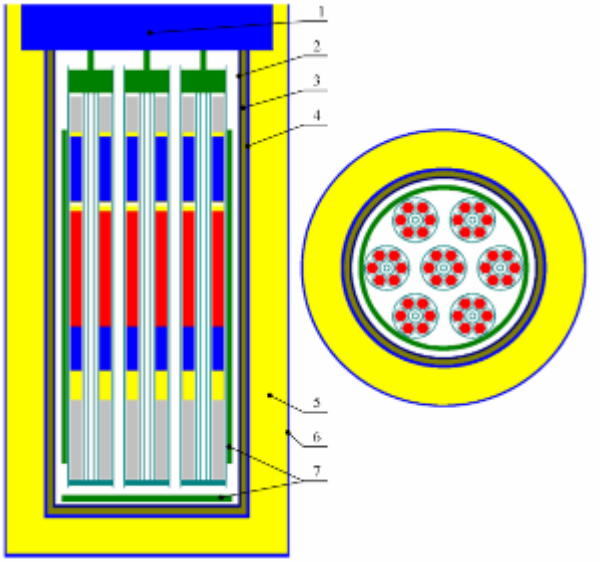


Рисунок 1. Расчетная конфигурация УКХ: 1 – крышка, 2 - стакан внутренний, 3 - наполнитель лёгкий, 4 - стакан силовой, 5 - наполнитель тяжёлый, 6 - стакан наружный, 7 - обечайка и днище дистанционирующей решетки

Источники излучения

Значения спектральных характеристик и активности ОТВС взяты из работ [6] и [7].

Работа [6] является отчётом об исследованиях распределения мощности экспозиционной дозы по высоте четырёх наиболее “горячих” чехлов на расстоянии 18, 50, 117 и 149 см от их поверхности. Данных по активности топлива и спектру излучения в ней не содержится. Согласно результатам измерений сделанных в этой работе, наибольшая мощность дозы γ-излучения на расстоянии 18 см от поверхности одного из наиболее “горячих” чехлов (№ 318) составляет приблизительно 5000 Р/ч, причём погрешность измерения не указана. Поэтому в расчётах принимается, что мощности дозы измерены с погрешностью не менее 30%. С учётом величины погрешности консервативно предполагается, что мощность дозы γ-излучения на расстоянии 18 см от поверхности всех чехлов загруженных в МБК составляет 6500 Р/ч.

Работа [7] содержит результаты расчёта кодом ORIGEN распределения активности по высоте и радиусу и спектральных характеристик излучения ОТВС находящихся в чехле №373. В этой работе нет данных по распределению мощности дозы, поэтому с целью нахождения наиболее консервативного варианта для задания модели источника излучения, такой расчёт был выполнен.

Результаты расчёта распределения мощности экспозиционной дозы по высоте для чехлов №318 (увеличение значений на 30% по сравнению с исходными) и №373 на расстояниях 18 см и 149 см от поверхности приведены на рисунке 2. Из рисунков видно, что хотя на расстоянии 18 см различия между чехлом №318 и №373 достаточно велики, на расстоянии 149 см они уже менее заметны. Поэтому модель спектра и распределения активности источников ОТВС описанная в работе [7] вполне может быть использована и в настоящей работе.

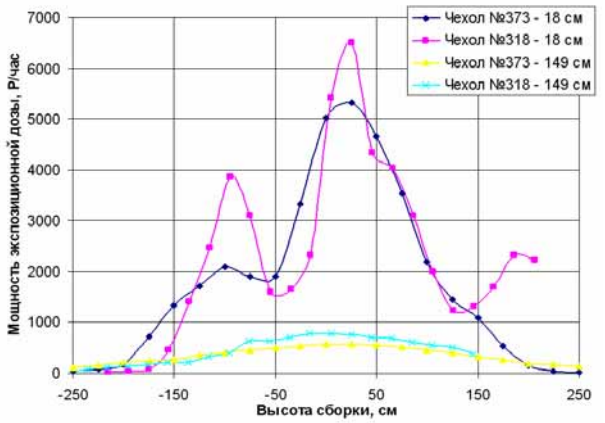


Рисунок 2. Распределение мощности экспозиционной дозы по высоте для чехлов №318 и №373 на расстоянии 18 см и 149 см от поверхности

Однако, в целях консервативности расчётов, спектр работы [7] был искусственно модифицирован, чтобы придать профилю мощности дозы форму схожую с той, что образует чехол №318. Модификация заключалась в удвоении активности кобальта по всей высоте сборки. Консерватизм такого подхода доказывается результатами, представленными в таблице 1.

Таблица 1. Спектр излучения на поверхности чехла и на поверхности МБК

Интервал энергии, МэВ		Доза, относительные единицы	
		Чехол	МБК
0	0.35	0.0972	0.1550
0.35	0.64	0.7878	0.2742
0.64	1.15	0.0586	0.3670
1.15	1.18	0.0177	0.0146
1.18	1.34	0.0309	0.0687
1.34	1.56	0.0056	0.0418
1.56	3.00	0.0021	0.0787

Видно, что спектр излучения изменяется в сторону ужесточения – доза в диапазоне энергий от 0,64 до 3 МэВ (куда и входят линии Co^{60}) составлявшая 11% от общей дозы внутри УКХ, снаружи составит уже около 60%.

Распределение мощности экспозиционной дозы по высоте для шестиместного чехла, использующего модифицированную модель источников, в сравнении с распределением создаваемым чехлом №318 приведено на рисунке 3.

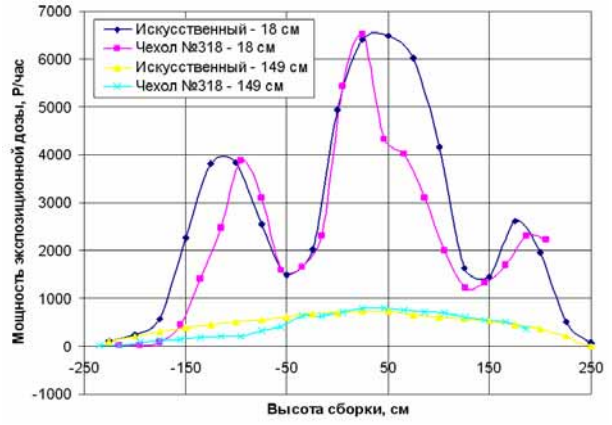


Рисунок 3. Распределение мощности экспозиционной дозы по высоте для чехла с модифицированной моделью источника и чехла №318 на расстоянии 18 см и149 см от поверхности

РАСЧЕТ ПРОСТРАНСТВЕННОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ДОЗОВЫХ ПОЛЕЙ

Выбранная модель источника была использована для расчёта пространственного распределения дозовых полей снаружи УКХ. Консервативно предполагалось, что защитно-демпфирующий кожух снят.

Из рисунка 4 видно, что на расстоянии 1 см от поверхности УКХ профиль мощности дозы имеет сложную форму, обусловленную зазорами в дистанционирующей решётке, однако уже на 100 см профиль выравнивается, поэтому вычисления для бо́льших расстояний делались на трёх высотных точках (-150 см, 0 и +150 см).

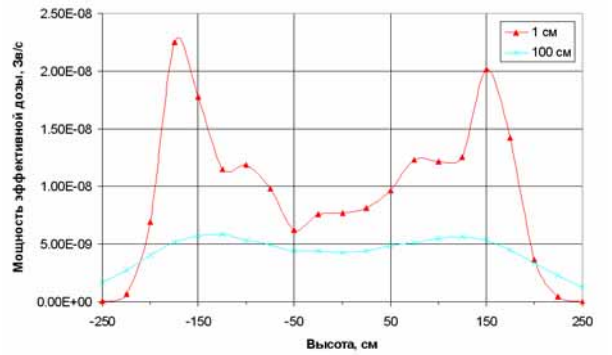


Рисунок 4. Распределение мощности эффективной дозы по высоте на поверхности УКХ и на расстоянии 100 см от неё

Зависимость мощности эффективной дозы от расстояния до УКХ приведена на рисунке 5.

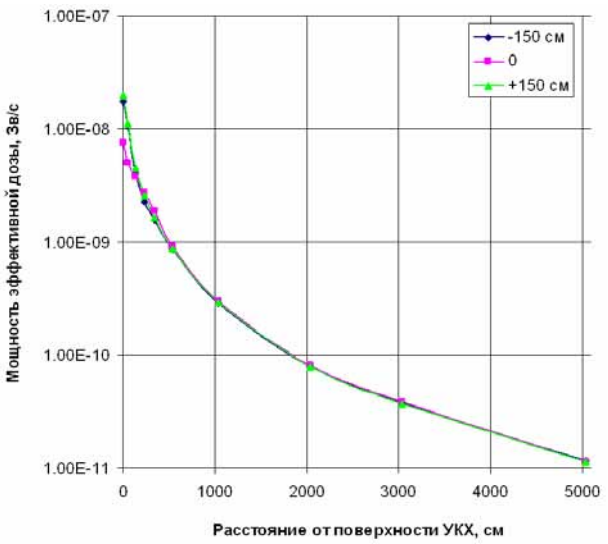


Рисунок 5. Зависимость мощности эффективной дозы от расстояния до поверхности УКХ на трёх высотных отметках

ВЫВОДЫ

В соответствии с [8] предел годовой дозы для населения установлен в размере 1 мЗв. Предполагаем нагрузку равномерной, тогда мощность дозы за пределами санитарно-защитной зоны не должна превышать 3.17×10^{-11} Зв/сек. Радиус санитарно-защитной зоны вокруг единичного МБК, в таком случае, должен быть не менее 40 метров.

В соответствии с [8] предел годовой дозы для персонала не должен превышать 20 мЗв. С учётом того, что время работы лица из персонала установлено в 1700 часов в год, предел по мощности дозы для него составляет 1.18×10^{-5} Зв/ч. Расчёты показывают (рисунок 4), что максимальная мощность дозы создаваемая источниками МБК равняется 8.28×10^{-5} Зв/ч. Таким образом, наблюдается семикратное превышение.

ЛИТЕРАТУРА

1. Правила безопасности при транспортировании радиоактивных веществ (ПБТРВ-73).
2. СГТПОРБ-2001. Санитарно-гигиенические требования по обеспечению радиационной безопасности»
3. Oak Ridge National Laboratory. "RSICC computer code collection, MCNP-4B. Monte-Carlo N-Particle Transport Code System", Contributed by Los Alamos National Laboratory. Los Alamos, New Mexico.
4. R.R. Nason, J.K. Shultis, R.E. Faw, C.E. Clifford, “A Benchmark Gamma-Ray Skyshine Experiment,” Nuclear Science and Engineering, 79, стр. 404, 1981г.
5. Обращение с отработавшим топливом реактора БН-350. Анализ и обоснование безопасности на этапе упаковки. Заключительный отчет. Том 1, 2, НЯЦ РК, 2001 г.
6. Азаров В.А., Силаев М.Е. «Экспериментальное определение параметров поля мощности дозы гамма – излучения вблизи чехлов с ОТВС БН-350», отчет об исследовании
7. Шеффер Р.В. Служебная записка. Аргонская национальная лаборатория. 16.09.2002
8. СП2.6.1.758-99, Нормы радиационной безопасности (НРБ-99), Агентство по делам Здравоохранения Респ. Казахстан, 1999г.

ШН-350 РҚ ӨҢДЕЛГЕН ЯДРОЛЫҚ ОТЫНМЕН БІРГЕ МЕТАЛЛ БЕТОНДЫ КОНТЕЙНЕРЛЕРДІҢ АРТЫҚ ТИЕЛГЕН АЛАҢЫНДАҒЫ САНИТАРЛЫҚ –ҚОРҒАНЫС АУМАҒЫНЫҢ МӨЛШЕРІНЕ БАҒА БЕРУ

Тур Е.С., Мукенева С.А.

ҚР Ұлттық ядролық орталық

Жеті орынды металл бетонды контейнерлерде тасымалданатын ШН – 350 РҚ өңделген ядролық отыннан шығатын дозалық сызықтың есеп нәтижелері келтірілген. Алынған нәтижелер артық тиелген контейнерлерге байланысты жағадайларда қызметкерлер мен тұрғындарға әсер ететін дозалық жүктемеге баға беру үшін қолданылады. Есеп жүргізу үшін MCNP коды пайдаланылды

AREA ESTIMATE FOR BUFFER AREA OF LOADING/UNLOADING SITE FOR METAL-CONCRETE CASKS WITH BN-350 SPENT NUCLEAR FUEL

E.S. Tur, S.A. Mukeneva

National Nuclear Center RK

Calculation results are presented for radiation fields induced by BN-350 spent nuclear fuel transported in seven-pack metal-concrete cask. The results are used to evaluate dose load on personnel and population at the cask loading/unloading operations. For the purpose of calculations, MCNP code was applied.

УДК 539.21:621.039

ПОСЛЕРЕАКТОРНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ТВЭЛОВ, ИСПЫТАННЫХ НА ЧЕРЕДУЮЩИХСЯ РЕЖИМАХ РАБОТЫ РЕАКТОРА ЯЭДУ

[1)]Дерявко И.И., [2)]Перепелкин И.Г., [1)]Стороженко А.Н.

[1)]Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан
[2)]Национальный ядерный центр РК, Курчатов, Казахстан

Рассмотрено изменение состояния стержневых керамических твэлов под влиянием изменений условий их эксплуатации при смене режима работы реактора трехрежимной ядерной энерго-двигательной установки. Представлены результаты исследований твэлов, прошедших испытания в реакторах ИРГИТ и РА сначала на двигательном режиме, а затем на энергетическом режиме малой мощности реактора ЯЭДУ.

ВВЕДЕНИЕ

Условия эксплуатации стержневых керамических твэлов из (U,Zr)C+C и (U,Zr,Nb)C в реакторе трехрежимной ядерной энерго-двигательной установки на каждом из режимов существенно различны по многим параметрам – по температуре и длительности облучения; нейтронному потоку; типу, давлению и перепаду давления теплоносителя; механическим и термическим нагрузкам [1]. Самым жестким режимом является двигательный режим (ДР), а самым мягким – энергетический режим малой мощности (РММ); энергетический режим большой мощности (РБМ) по жесткости занимает некоторое промежуточное положение между режимами ДР и РММ.

Ясно, что в зависимости от конкретной последовательности работы реактора ЯЭДУ на различных режимах (конкретной циклограммы работы реактора) состояние твэлов к концу 30000-часовой эксплуатации может быть заметно различным. Ясно также, что, вопрос оптимизации циклограммы работы реактора ЯЭДУ может быть решен только при наличии достаточно полных результатов наземных реакторных испытаний твэлов.

На основании имеющихся на настоящий момент результатов реакторных испытаний можно утверждать лишь то, что при эксплуатации твэлов только на режиме РММ их состояние должно в первые примерно 20 тысяч часов улучшаться, а некоторая деградация будет наблюдаться лишь после ~25 тысяч часов эксплуатации [2,3]. При эксплуатации твэлов только на режиме ДР значительная деградация их исходного состояния может иметь место уже после первых пяти-семи единичных пусков реактора [4]. При эксплуатации твэлов только на режиме РБМ деградация их исходного состояния не должна быть опасно высокой [5].

Последнее утверждение основывается на результатах исследования состояния твэлов, испытанных в технологических каналах КЭТ реакторе ИВГ.1 последовательно на режимах ДР, РММ и РБМ реактора трехрежимной ЯЭДУ. Из указанной последовательности видно, что испытания твэлов на режиме РБМ были не самостоятельными испытаниями, а заключительной частью испытаний на чередующихся режимах реактора ЯЭДУ. Поэтому установление показателей состояния твэлов на этом режиме могло быть осуществлено только путем определения тех изменений их состояния, которые происходят при увеличении количества реакторных пусков на режиме РБМ при условии равного количества и длительности пусков на предшествующих режимах ДР и РММ.

При этом предполагалось, что выполненные в реакторе ИВГ.1 испытания твэлов на чередующихся (ДР+РММ+РБМ)-режимах реактора ЯЭДУ следует рассматривать как испытания, в которых исследовалось влияние длительного (~14 ч) воздействия относительно мягких условий режима РБМ на состояние твэлов, уже поврежденных в той или иной степени в ходе кратковременных испытаний в жестких условиях режима ДР. То есть имелось в виду, что один короткий пуск на режиме РММ никак не мог повлиять на изменение состояния твэлов, достигнутое в испытаниях на режиме ДР.

В связи с последним замечанием уместно представить результаты послереакторных исследований твэлов, испытанных на чередующихся (ДР+РММ)-режимах реактора двухрежимной ЯЭДУ, которые подтверждают это предположение.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Испытания твэлов на таких чередующихся режимах были осуществлены при последовательном выполнении их испытаний сначала на режиме ДР в проточных водородных технологических каналах ТК100 в реакторе ИРГИТ №2, а затем на режиме РММ в заглушенных и заполненных гелием каналах ТК100 реактора ИРГИТ №3. Кроме того, подобные испытания твэлов были осуществлены при последовательном выполнении их испытаний сначала на режиме ДР во входных – низкотемпературных – нагревных секциях (НС) проточных водородных каналов ТК100 реактора ИРГИТ №1, а затем на режиме РММ в высокотемпературных НС беспроточных гелиевых ампул реактора РА.

Исследование влияния условий режима РММ (при облучении в гелиевых ампулах реактора РА) на состояние твэлов, уже прошедших испытания на режиме ДР (при облучении в водородных каналах

реактора ИРГИТ №1), показало следующее. Все твэлы (в количестве 180 штук), предварительно испытанные в каналах ТК100, после испытаний различной длительности (см. таблицу 1) при температуре облучения в диапазоне ~1000…1350 К в ресурсных ампулах РА-11, РА-29 и РА-14 реактора РА остались целыми.

Таблица 1. Температуры облучения твэлов на режиме ДР в реакторе ИРГИТ №1 и на режиме РММ в реакторе РА

Реактор ИРГИТ №1			Реактор РА		
Номер канала	Номер НС	$T_{обл}$, К	Номер ампулы	τ, ч	$T_{обл}$, К
ТК №9	НС-2	~1000	РА-11	638	~1250
ТК №5	НС-1	~600	РА-29	1157	~1000
ТК №5	НС-2	~1000	РА-14	4803	~1350

Изменения всех параметров твэлов, испытанных на (ДР+РММ)-режимах, полностью соответствовали тем изменениям параметров, которые были зафиксированы у твэлов, испытанных только на режиме РММ при тех же температурах облучения в тех же ампулах. То есть изменения параметров твэлов, достигнутые в испытаниях на режиме ДР (на рисунке 1 показан характер изменения наиболее чувствительных параметров этих твэлов по высоте ТВС) полностью отожглись в процессе длительных испытаний на режиме РММ.

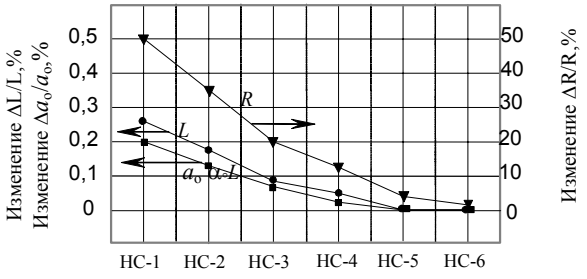


Рисунок 1. Изменение длины, среднемассового периода решетки и погонного электросопротивления твэлов после испытаний на режиме ДР в каналах ТК100 реактора ИРГИТ №1

Прочность твэлов, испытанных на (ДР+РММ)-режимах оказалась примерно такой же, как и прочность твэлов после испытаний только в ресурсных ампулах на режиме РММ.

Полученное означает, что упрочнение твэлов входных НС каналов ТК100, достигнутое в условия режима ДР за счет возникновения в них остаточных радиационных макронапряжений $\sigma_{ост}$ [6,7], полностью отожглось в процессе облучения в условиях режима РММ при более высокой температуре $T_{обл}$. Отсутствие напряжений $\sigma_{ост}$ в твэлах (отсутствие градиентов объемных изменений по сечениям топливных стержней) было экспериментально установлено путем рентгенографических измерений макронапряжений на поверхностях твэлах из секции НС-1 канала ТК100 после их облучения в ресурсной ампуле РА-29.

Исследование влияния условий режима РММ (при облучении в заглушенных гелиевых каналах ТК100 реактора ИРГИТ №3) на состояние твэлов, уже прошедших испытания на режиме ДР в реакторе ИРГИТ №2, было осуществлено путем сопоставления радиационных изменений прочности у твэлов, испытанных на режиме ДР и на (ДР+РММ)-режимах.

Как можно видеть из представленных на рисунке 2 результатов, у твэлов из НС-3, НС-4, НС-5 и НС-6 (и частично у твэлов из НС-2) уровень упрочнения после испытаний на чередующихся режимах определяется совместным положительным влиянием возникших в условия режима ДР остаточных радиационных макронапряжений и возникшим после 105-часового облучения на режиме РММ эффектом атермического радиационного упрочнения [3].

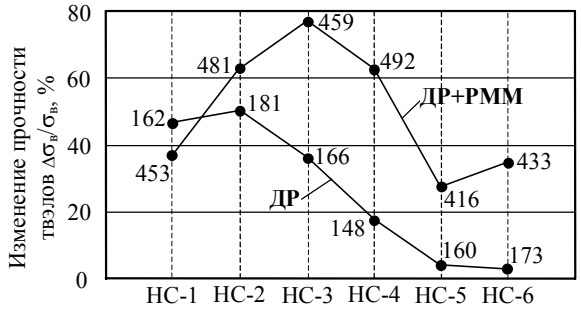


Рисунок 2. Характер изменения прочности твэлов по высоте ТВС каналов ТК100 после испытаний в реакторе ИРГИТ №2 (ДР) и после испытаний последовательно в реакторах ИРГИТ №2 и ИРГИТ №3 (ДР+РММ)

В твэлах из НС-1, облучение которых на режиме РММ осуществлялось при температуре $T_{обл}$ примерно 1350 К, произошел достаточно полный отжиг остаточных макронапряжений, и их уровень упрочнения определяется поэтому только эффектом атермического радиационного упрочнения (в твэлах из НС-2 имел место частичный отжиг остаточных макронапряжений).

Таким образом, можно видеть, что влияние длительного облучения на режиме РММ на состояние твэлов, уже прошедших испытания на режиме ДР, определяющим образом зависит от соотношения температур их облучения на каждом из указанных режимов. Из этого заключения вытекает важное следствие. Поскольку в реакторе двух- или трехрежимной ЯЭДУ температура эксплуатации твэлов на режиме РММ по всей высоте ТВС ниже, чем их температура эксплуатации на режиме ДР, то при эксплуатации реактора ЯЭДУ на режиме РММ будет наблюдаться повышение прочности твэлов (по сравнению с их прочностью после эксплуатации на режиме ДР) за счет эффекта атермического радиационного упрочнения и за счет залечивания поверхностных трещин [8], если таковые появятся при эксплуатации на режиме ДР.

Кроме того, возвращаясь к вышеупомянутым испытаниям твэлов в реакторе ИВГ.1 на чередующихся (ДР+РММ+РБМ)-режимах реактора трехрежимной ЯЭДУ, можно утверждать, что влияние короткого пуска реактора на режиме РММ действительно не могло повлиять на состояние твэлов, упрочненных остаточными радиационными макронапряжениями или, наоборот, поврежденных трещинами в пусках на режиме ДР, т.к. температуры облучения твэлов во всех НС в пуске на режиме РММ были ниже их температур облучения в пусках на режиме ДР.

Литература

1. Дерявко И.И., Зеленский Д.И., Перепелкин И.Г. и др. Реакторная отработка стержневых карбидных твэлов ЯРД и ЯЭДУ. – Доклады V межд. конф. "Ядерная энергетика в космосе, Подольск, 1993 г.", Подольск, ГосНИИ НПО "Луч", ч. 2, 1999, с. 539-543.
2. Власов К.П., Меденцев В.П., Мозуль И.И. и др. Поведение под облучением материалов на основе тугоплавких карбидов. – ВАНТ, сер. "Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение", вып. 4(27), 1983, с. 42-46.
3. Дерявко И.И., Жданов В.С., Перепелкин И.Г., Черепнин Ю.С. Радиационная стойкость топливных карбидных материалов при облучении в низкопоточном реакторе – ВАНТ, сер. " Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение", вып. 1(60), 1993, с. 56-59.
4. Дерявко И.И., Перепелкин И.Г., Пивоваров О.С. и др. Анализ возможностей повышения функциональной работоспособности твэлов реактора ЯРД. – Вестник НЯЦ РК, сер. "Атомная энергетика и безопасность АЭС", вып. 1, Курчатов, НЯЦ РК, 2000, с. 88-92.
5. Дерявко И.И., Перепелкин И.Г., Пивоваров О.С., Стороженко А.Н. Исследование работоспособности стержневых карбидных твэлов на энергетическом режиме большой мощности реактора ЯЭДУ. – Вестник НЯЦ РК, сер. "Ядерная физика и радиационное материаловедение", вып. 4, 2000, с. 122-126.
6. Дерявко И.И., Тарасов В.И. Исследование изменений прочности твэлов после реакторных испытаний применительно к работе ЯЭДУ на двигательном и энергетических режимах. – Доклады III отрасл. конф. "Ядерная энергетика в космосе. Ядерные ракетные двигатели, Семипалатинск-21, 1992 г.", Подольск, НИИ НПО "Луч", ч. 3, 1993, с. 796-799.
7. Дерявко И.И., Егоров В.С., Ланин А.Г. и др. Рентгенографическое исследование остаточных макронапряжений в безоболочковых стержневых карбидных твэлах. – Вестник НЯЦ РК, сер. "Ядерная физика и радиационное материаловедение", вып. 4, Курчатов, НЯЦ РК, 2001, с. 99-104.
8. Дерявко И.И., Перепелкин И.Г., Пивоваров О.С., Черепнин Ю.С. Исследование радиационной стойкости безоболочковых стержневых карбидных твэлов. – Тезисы докл. межд. научно-практ. конф. "Ядерная энергетика в Республике Казахстан. Перспективы развития, Актау, 1996 г.", Курчатов, ИАЭ НЯЦ РК, 1996, с. 86.

ЯЭҚҚ РЕАКТОРЫ ЖҰМЫСЫНЫҢ КЕЗЕКТІ РЕЖІМДЕРІНДЕ СЫНАЛҒАН ТВЭЛДЕРДІҢ РЕАКТОРДАН КЕЙІНГІ ЗЕРТТЕЛУЛЕРІ

[1)]Дерявко И.И., [2)]Перепелкин И.Г., [1)]Стороженко А.Н.

[1)]ҚР ҰЯО Атом энергиясы институты, Курчатов қаласы
[2)]ҚР Ұлттық ядролық орталығы

Өзекті керамикалық твэлдердің үшрежімді ядролық энерго-қозғалтқыш қондырғы реакторының жұмыс режімін ауыстырған кездегі оларды пайдалану жағдайының өзгеруі әсерімен қолданылуының өзгеру жағдайы қаралды. ИРГИТ және РА реакторларында, алдымен қозғалтқыш режімде, соңынан ЯЭҚҚ реакторының кіші қуатты энергетикалық режімінде сыннан өткен твэлдер зерттеулерінің нәтижелері ұсынылған.

POST REACTOR RESEARCHES OF FUEL PINS, TESTED UNDER ALTERNATING NEMF REACTOR FUNCTIONING MODES

[1)]I.I. Deryavko, [2)]I.G. Perepelkin, [1)]A.N. Storozhenko

[1)]Institute of Atomic Energy NNC RK
[2)]National Nuclear Center RK

Changing of rod ceramic fuel pins state under their exploitation conditions changing influence at alternating of three-mode nuclear energy-moving facility reactor functioning has been examined. There are presented the results of researches of fuel pins, tested in the reactor IRGIT and RA, firstly under moving mode, then – under energy mode of minor power of NEMF reactor.

УДК 620.9.001.12/.18

О ВОЗМОЖНОСТЯХ ТЕПЛОВЫХ МАШИН С ГАЗОВЫМ РАБОЧИМ ТЕЛОМ В ЗАМКНУТОМ ЦИКЛЕ

[1)]Котов В.М., [1)]Тихомиров Л.Н., [2)]Котов С.В., [1)]Райханов Н.А.

[1)]Национальный ядерный центр Республики Казахстан, Курчатов
[2)]Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Приведен анализ работоспособности двигателей и тепловых насосов с замкнутыми циклами, основанными на использовании хорошо реализуемых на практике адиабатических и изобарических процессов. Показаны преимущества данных циклов перед циклом двигателей Стирлинга и возможности их применения в поршневых машинах.

Ограниченность запасов ископаемого органического топлива, особенно его жидких видов, заставляет создавать новые типы двигателей, технологий. Ставятся различные задачи в этом направлении – от получения жидкого топлива из углей до повышения эффективности солнечных батарей.

Большие возможности здесь могут быть у двигателей с внешним нагревом рабочего тела. Всеядность таких машин к топливу позволяет потреблять как жидкое топливо любых видов, так и твердое – уголь, возобновляемые виды органического топлива.

Хорошо известны два типа таких машин – паровые двигатели, работающие по циклу Ренкина, и двигатели Стирлинга [1-3], работающие на газовом рабочем теле во всех процессах цикла. Первые использовались ранее в широком диапазоне устройств и мощностей, и сейчас являются основой большой электроэнергетики. Вторые хорошо отработаны в единичном производстве, обладают удовлетворительной топливной экономичностью, но дороги и имеют сложную газовую и механическую схемы.

Всеядность паровых двигателей и двигателей Стирлинга основана на разделении трактов горения и осуществления термодинамических процессов. Это разделение позволяет применять оптимальные рабочие тела, при оптимальных их плотностях.

Недостатком паровых машин являются неустранимые потери, связанные с наличием фазовых преобразований.

Принципиальные недостатки двигателей с газовыми рабочими телами известны всем, но на них мало обращают внимания. Авторы считают, что именно это является причиной отсутствия в практике двигателей с газовыми рабочими телами, в частности, топтание на месте с развитием двигателей Стирлинга.

Основным недостатком таких двигателей является необходимость совершения в цикле процессов с большой отрицательной механической работой. Для того, чтобы ввести этот параметр в системный анализ возможных циклов его следует трансформировать. Многообразие газовых циклов заставило нас использовать простые правила.

Первое. Процессы удобно представлять в двойном логарифмическом масштабе, X – объем, Y – давление. В этом случае все идеальные процессы, включая политропные, имеют вид прямых линий, а плоское изображение с параметрами "объем" и "давление" отображает третий важный параметр – "температура" рабочего тела в любой точке цикла.

Второе. Удобно циклы из этих процессов обозначать в буквенном виде, используя следующие правила:

1. Отдельному термодинамическому процессу в цикле соответствует своя латинская буква. A – адиабатический процесс, P – изобарический, V – изохорический, T - изотермический.

2. Цикл начинается с состояния с наибольшим давлением и наибольшей температурой.

Перечень букв в таком случае однозначно определяет направление вращения в цикле. Например, циклы APAP и PAPA на графике отображаются одинаково. Но эти циклы противоположны по вращению, т.к. от максимальной температуры цикл APAP начинается адиабатическим расширением и может совершаться только по часовой стрелке, а цикл PAPA начинается изобарическим охлаждением и совершается против часовой стрелки.

Цикл Карно по данной классификации будет – TATA, идеально выполненный цикл Стирлинга – TVTV.

Циклы могут отличаться числом входящих в них процессов, степенью расширения рабочего тела, использованию рекуперации тепловой энергии. Не вдаваясь в глубины возможной классификации, рассмотрим особенности наиболее простого в осуществлении цикла APAP. На рисунке 1,а представлены три цикла APAP с одинаковыми предельными температурами. Два из них выполнены на инертном газе (неоне, линии 1,2) и отличаются степенью расширения, третий на азоте (начальная линия 3). На рисунке 1,б представлены зависимости идеального КПД этих циклов, величины выходной работы, отношения суммы модулей работ цикла к выходной работе и удельной мощности газа от степени расширения.

Из этих зависимостей ясно следующее:

- Циклы APAP имеют ограничение по степени расширения при заданных максимальных температурах цикла.
- Для получения внешнего КПД двигателя необходимо использовать какую-то функцию, связывающую "совершенство" разработанного двигателя с данными характеристиками.

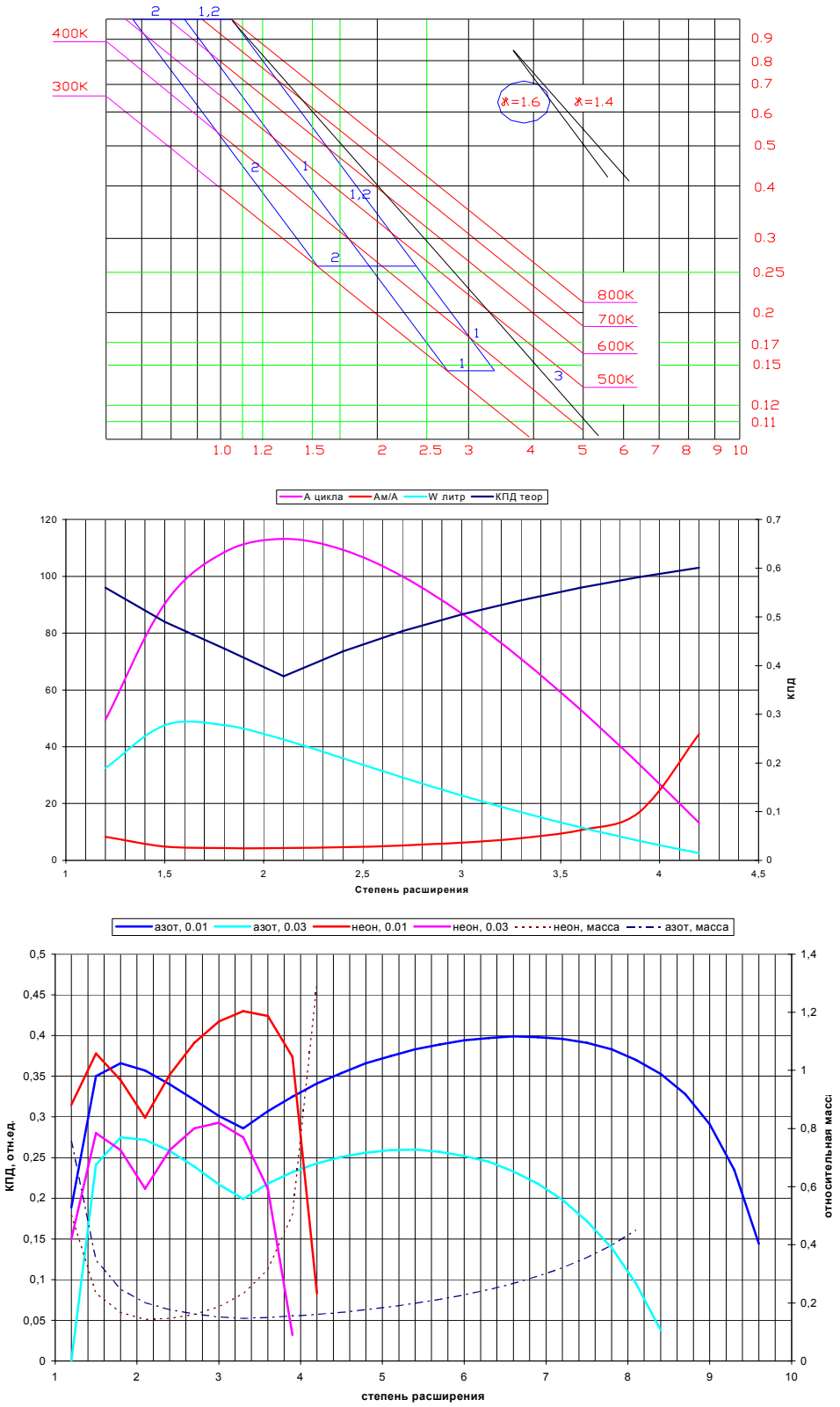


Рисунок 1. а – диаграмма цикла АРАР для неона (линии 1 и 2) и начальный адиабатический процесс для азота (линия 3); б – зависимости КПД цикла на неоне при идеальном исполнении двигателя, выходной работы А, отношения Ат/А и удельной объемной работы газа от степени расширения; в - зависимости полного КПД цикла АРАР от рода газа, степени механического совершенства и массы двигателя от степени расширения

Одной из составляющих требуемой функции является величина относительных потерь механической энергии, накладываемая на выходную работу цикла и сумму модулей работ цикла. Следует отметить, что в любом реальном двигателе, будут присутствовать два вида потерь – потери, связанные с передачей механической энергии внутри цикла (от одного процесса к другому) и потери, связанные с передачей энергии к внешнему потребителю. Вторые потери мы в данной работе не рассматриваем.

Дополнительными составляющими потерь в любом двигателе будут потери такие:

- на рассеяние тепловой энергии;
- на проведение рекуперации тепла в цикле;
- на перемещение рабочего тела в тракте двигателя;

В общем виде расчет полного КПД $\eta_п$ двигателя можно вести по формуле

$$\eta_п = \eta_i – (k_1 \cdot A_m + k_2 \cdot Q_r + k_3 \cdot Q_s)/A_в – k_4 / W_l$$

где η_i – теоретический КПД цикла; A_m – сумма модулей работ цикла; Q_r – рекуперируемая тепловая энергия в цикле; Q_s – тепловая энергия, рассеиваемая в цикле; $A_в$ – механическая энергия, выдаваемая во внешнюю среду (сумма работ цикла); W_l – удельная объемная работа, совершаемая рабочим телом в цикле; $k_1 – k_4$ – коэффициенты качества исполнения двигателя.

Положим постоянными коэффициенты $k_2 – k_4$ и рассмотрим влияние k_1 на полный КПД двигателя. Для цикла APAP это влияние представлено на рисунке 1,в с учетом рекуперации тепловой энергии в области малых расширений рабочего тела. Приведена оценка массы двигателя. Можно отметить следующее:

- Максимальный КПД достигается при работе на инертном рабочем теле в области расширений, где нет рекуперации тепловой энергии.
- Машины с инертными рабочими телами легче осуществить на практике из-за больших фазовых величин открытых состояний перепускных механизмов.
- При граничных температурах цикла 300 К (27 ^oC) и 773 К (500 ^oC) и $k_1 < 0.03$ в цикле APAP достигаются КПД характерные для КПД, достигнутых в хороших двигателях Стирлинга при максимальной температуре близкой к 973 К (700 ^oC).

На первый план в деле реализации двигателей с внешним подводом тепловой энергии выходят поршневые машины. Основная причина здесь заключается в том, что при преобразовании энергии газа в механическую в турбинных установках КПД не превышает 90 % ($k_1 = 0.1$). В поршневых соответствующий КПД может быть близок к 100 %.

Но и здесь следует тщательно подходить к потерям механической энергии в процессе передачи энергии от расширяющегося газа к сжимаемому газу. Именно к этому процессу относятся величины k_1.

Можно допустить потери при передаче механической энергии от вала двигателя к внешнему потребителю на уровне 5 – 10 %, но потери от расширяющегося газа к сжимаемому газу желательно иметь на уровне 1 – 2 %.

В современных поршневых ДВС, как правило, используется соединение с коленчатым валом одного поршня, работающего на одну камеру. В такой схеме потери в передаче энергии от расширяющегося газа к сжимаемому газу будет на уровне 4 % и более. Причина тому включение в последовательную цепочку передачи энергии узлов трения между шатунами, поршнями и коленчатым валом. Передача энергии должна вестись через жесткие элементы от поршня к поршню, при работе сжимаемого и расширяемого объемов газа в противофазе. Такое исполнение позволит обеспечить лучшее механическое качество на рассмотренном в настоящей работе уровне потерь энергии Ка = 0.01. Полностью выполнить настоящие требования легче в свободнопоршневых машинах. Но и двигатели, в которых поршни соединены с коленчатыми валами, вполне работоспособны, если в них приняты соответствующие меры [4,5].

Можно ожидать, что свободнопоршневые машины будут вне конкуренции тогда, когда необходимо использовать отношение $A_m/A_в$ большее некоторого граничного значения. Высокие значения $A_m/A_в$ могут потребоваться в работе холодильников и тепловых насосов.

Полный КПД различных циклов рассчитывался с использованием программного комплекса, составленного на языке QBASIC [6]. В программах использованы характеристики газов, представленные в [7].

Были исследованы характеристики 21 прямого цикла с 4 процессами: APAP, APAV, APTP, APTV, ATAP, ATAV, AVAV, AVTV, TATA, TATP, TATV, TPTA, TPTP, TPTV,TVAV, TVPA, TVTA, TVTV, TVTP, VPVP и 8 циклов с 3 процессами: APV, ATV, ATP, TPA, TPV, TVA, VAP, VTP.

Среди них лучшими характеристиками обладают циклы TATA (Карно), TVTV и TPTP - близкие к Карно, но требующие проведения рекуперации тепловой энергии. Несколько худшие характеристики у цикла ATAP, затем APAP, остальные циклы можно отнести к худшим группам. Характеристики цикла TATA представлены на рисунке 2. Можно отметить:

- цикл TATA является неограниченным по расширению;
- максимум полного КПД достигается при степени расширения в несколько единиц;
- изменения КПД в области от 2-3 единиц до нескольких десятков незначительны.

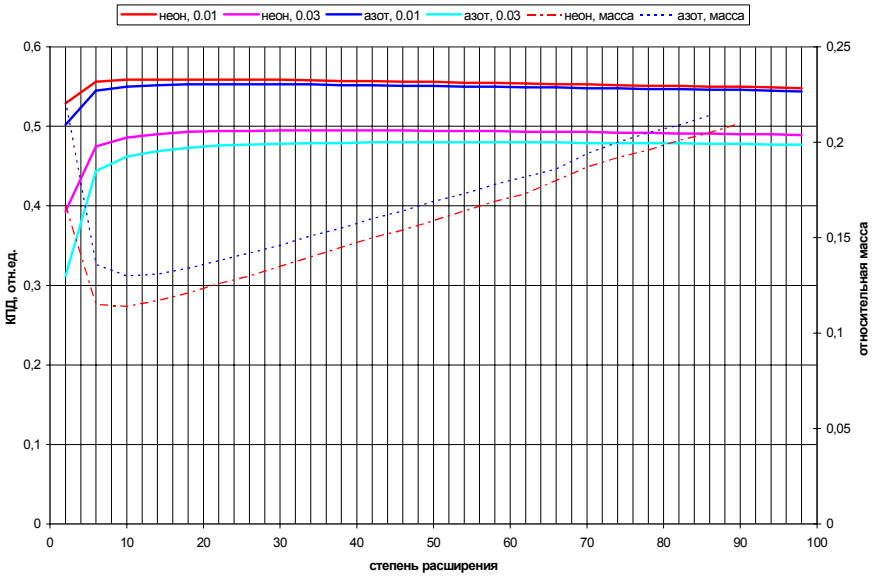


Рисунок 2. Зависимости полного коэффициента полезного действия цикла TATA от рода рабочего тела (азот, неон), механического совершенства ($K_{пот}$ = 0.01 и 0.03) и степени расширения газа в адиабатическом рабочем процессе. $T_{макс}$=773 К, $T_{мин}$=300 К

Теоретически, в том числе, с учетом потерь в конструкции, данный цикл является лучшим. Однако в настоящее время нет технических решений, которые позволили бы реализовать этот цикл, а точнее Т процесс, на практике. Близкий ему цикл TVTV также не имеет технических решений по реализации Т и V процессов. Цикл TVTV реализован с рядом приближений в двигателе Стирлинга. Особенностью этих приближений является необходимость работы в области малых расширений. На рисунке 3 представлены характеристики цикла TVTV для данной области и ближайших окрестностях.

Можно отметить, что полное КПД цикла TVTV в области малых расширений (ε<2) хуже, чем в оптимуме цикла APAP. КПД реального двигателя Стирлинга будет еще меньше за счет неидеальности заложенных в него процессов. Выход в область достаточно высоких расширений невозможен по этой же причине.

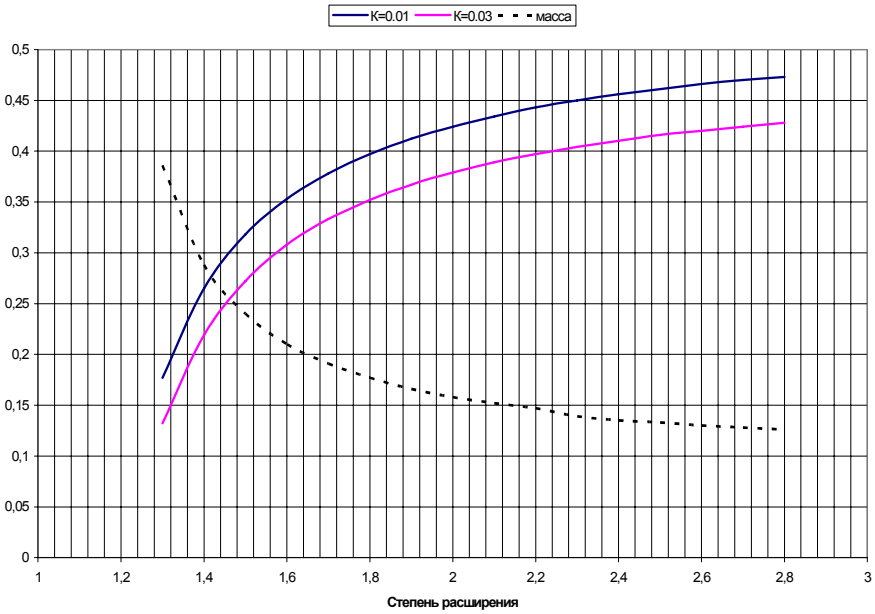


Рисунок 3. Зависимости полного коэффициента полезного действия цикла TVTV для двух атомного рабочего тела (азот) от механического совершенства ($K_{пот}$ = 0.01 и 0.03) и степени расширения газа в адиабатическом рабочем процессе в области малых расширений. $T_{макс}$=773 К, $T_{мин}$=300 К.

К идеальному циклу Карно можно приблизиться и с другой стороны с использованием легко осуществляемых на практике A, P процессов. На рисунке 4 представлена диаграмма двухступенчатого приближения к T процессам, а на рисунке 5 – характеристики цикла с трехступенчатым приближением. Полный КПД этого цикла в оптимальной области на неоне мало отличается от TATA (52 против 57 TATA и 43 % APAP). Реализация не вызывает дополнительных сложностей, кроме установки нужного числа цилиндров с требуемыми объемами.

Прямое отношение к теме двигателей с газовым рабочим телом имеет проблема использования тепловых насосов. В районах с относительно теплой зимой, используются тепловые насосы для отопления различных помещений. Для районов с суровой зимой препятствием для применения тепловых насосов является, как правило, отсутствие удовлетворительных источников низкопотенциального тепла. При этом все расчеты основываются на использовании фреоновых тепловых насосов.

Тепловые насосы с газовым рабочим телом могут эффективно работать для целей отопления отбирая тепло от окружающего воздуха.

На рисунке 6 представлена зависимость отношения отбираемого из среды тепла Q к механической мощности теплового насоса W для нескольких значений k_1 и метана в качестве рабочего тела. Из этих данных видно, что приемлемыми машинами можно считать те, у которых $k_1<0.02$.

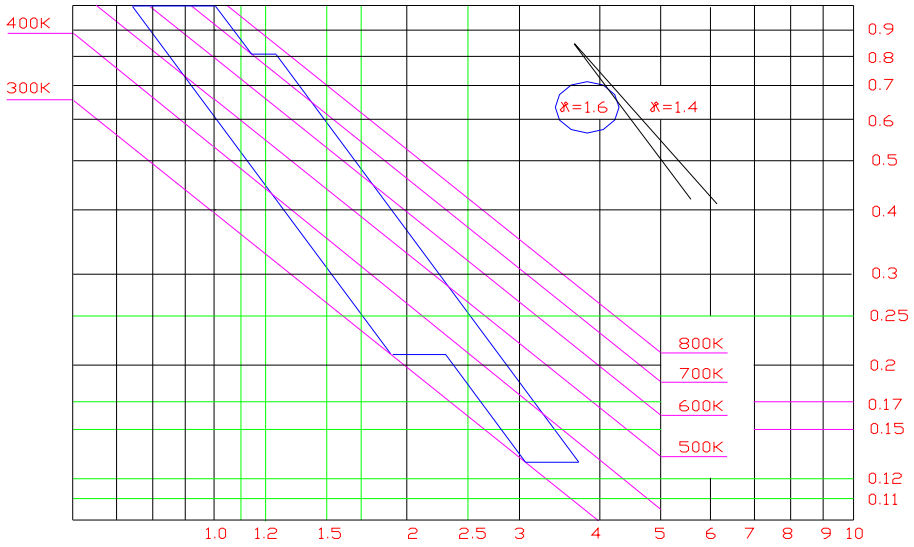


Рисунок 4. Диаграмма цикла с двух ступенчатым AP приближением к циклу TATA.

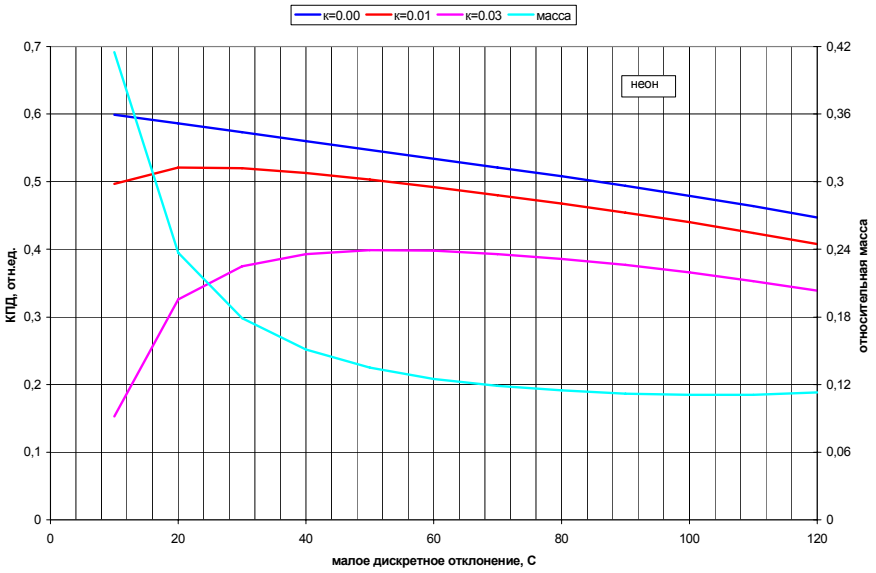


Рисунок 5. Зависимости полного коэффициента полезного действия цикла и массы двигателя с дискретным 3-х ступенчатым AP приближением к TATA (по линиям изотерм) от механического совершенства (K = 0.01 и 0.05) и отклонения от предельных температур в коротких процессах. Рабочее тело – неон. $T_{макс}$=773 K, $T_{мин}$=300 K.

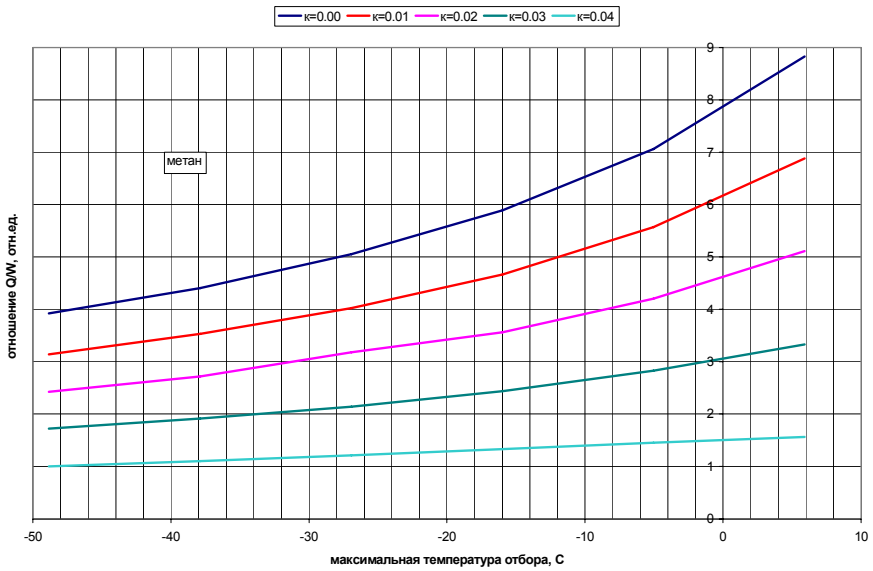


Рисунок 6. Зависимость отношения отбираемого из среды тепла Q к мощности теплового насоса W с учетом потерь от максимальной температуры отбора тепла и механического совершенства. Рабочее тело – метан, цикл РАРА. Температура на выходе - от 22 до 50 С

Следует отметить, что отбор тепла в цикле РАРА осуществляется при изменяющейся температуре рабочего тела. Этот факт является благоприятным для повышения эффективности солнечного подогрева нагревателя тепловой машины, использования аккумуляторов тепла и некоторых других решений. Использование циклов АТАТ и VTVT для тепловых насосов не выявило каких-либо существенных преимуществ перед циклом РАРА. Использование тепловых насосов с газовым рабочим телом, при $k_1<0.02$, практически не имеет ограничений для существующих зон расселения человека.

В НЯЦ РК проведены работы по созданию модели двигателя АРАР. Такая модель сконструирована, построена и в неполном объеме испытана. Основным техническим препятствием для проведения полномасштабных испытаний явилась конструкция прерывателя газовых потоков. Выбранный золотниковый прерыватель оказался неработоспособным.

В настоящее время проведены конструкторские работы по клапанному механизму, будет проведена реконструкция модели с расширением ее экспериментальных возможностей.

Использование тепловых машин с газовым рабочим телом в замкнутом цикле имеет большие перспективы. Достижимый КПД двигателей АРАР с дискретным приближением к ТАТА выше, чем у ДВС и двигателей Стирлинга, оценочная масса находится на уровне ДВС, а небольшая величина максимальной температуры цикла создает предпосылки малой стоимости двигателей.

Тепловые насосы с газовым рабочим телом позволяют обеспечить малые затраты энергии на отопление зданий даже в условиях холодных зим от имеющегося всюду источника тепла низкого потенциала – воздуха атмосферы.

Двигатели и тепловые насосы не требуют дефицитных и дорогих материалов для своего создания. Технические решения, лежащие в их основе просты. Требуются квалифицированный труд специалистов и инвестиции.

Литература

1. Ридер Г., Хупер Ч. – "Двигатели Стирлинга". Пер с англ. М., Мир, 1986, 464 с.
2. С.П.Столяров. Двигатели Стирлинга. Проблемы XXI века. Инженерные проблемы маркетинга. Спб., Двигателестроение. 2002 г. 1. стр. 9-12.
3. С.П.Столяров. Двигатели Стирлинга. Проблемы XXI века. Кинематические механизмы. Спб., Двигателестроение. 2002 г. 2. стр. 3-6.
4. В.М. Котов, Л.Н.Тихомиров. Поршневой двигатель с замкнутым рабочим циклом. Заявление о выдаче предварительного патента и патента Республики Казахстан на изобретение № 2002/0333.1 от 21 марта 2002 г.
5. В.М. Котов. Поршневая машина (варианты). Заявление о выдаче предварительного патента и патента Республики Казахстан на изобретение № 2002/0335.1 от 21 марта 2002 г.
6. В.М. Котов, С.В. Котов. Программный комплекс для расчета характеристик преобразования тепловой энергии в механическую термодинамических циклов с внешним подводом тепловой энергии. Инв № РГП НЯЦ РК. 2003 г.
7. Properties of Gases. Specific Heat. CRC Handbook of Tables for Applied Engineering Science, 2 edition, edited by R.Bolz and G.Tuve, CRC Press (1973).

ЖЫЛУ МАШИНАСЫНЫҢ ГАЗДЫҚ ЖҰМЫСТЫҚ ДЕНЕМЕН ТҰЙЫҚ ЦИКЛДА БОЛУ МҮМКІНДІКТЕРІ ТУРАЛЫ

[1)]Котов В.М., [1)]Тихомиров Л.Н., [2)]Котов С.В., [1)]Райханов Н.А.

[1)]Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы, Курчатов қаласы
[2)]ҚР ҰЯО атом энергетика институты, Курчатов, Қазақстан

Адиабатилік және изобарилік процестердің тәжірибеде дұрыс жүзеге асырылуына негізделген двигательдер мен жылу насостарының тұйық циклдағы жұмысқа қабілеттілігіне талдау жасалған. Осы циклдардың Стирлинг двигателдерінің циклдары алдындағы артықшылықтары және оларды поршенді машинаға қолданудың мүмкіндіктері көрсетілген.

TO CAPABILITIES OF HEAT ENGINES WITH GAS WORKING MEDIUM IN CLOSED CYCLE

[1)]V.M. Kotov, [1)]L.N. Tikhomirov, [2)]S.V. Kotov, [1)]N.A. Raikhanov

[1)]National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan, Kurchatov
[2)]Institute of Atomic Energy NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The effort gives analysis of performance of engines and heat pumps with closed cycles based on use of well practiced adiabatic and isobaric processes. Advantages of theses cycles are demonstrated as compared to Stirling engines, and capabilities of their application in piston machines.

СПИСОК АВТОРОВ

Айсабеков А.Ж., 94
Бурминский В.П., 71
Буртебаев Н., 71
Васильев Ю.С., 8
Верещак М.Ф., 85
Ганеев Г.З., 43, 45
Горин Н.В., 28
Городисский Д.М., 49
Дерявко И.И., 102
Джазаиров–Кахраманов В., 71
Доронина Т.А., 39
Енсебаева М.З., 32
Жанкадамова А.М., 32
Жданов В.С., 8
Жданов С.В., 49
Желтов Д.А., 91
Жотабаев Ж.Р., 81
Жумадилова Ж.А., 19
Зазулин Д.М., 71
Зиновьева М.В., 91
Кадыржанов К.К., 32, 85
Казачевский И.В., 85
Карпиков А.Н., 43, 45
Карташов Я.В., 91
Като М., 8
Кислицин С.Б., 32
Князев А.М., 91
Князев Б.Б., 85
Колодешников А.А., 8
Котов В.М., 19, 105
Котов С.В., 19, 105
Красовицкий П.М., 75
Ленник С.Г., 75
Ливенцова А.С., 75
Лисицин В.Н., 71
Лукашенко С.Н., 85
Лысухин С.Н., 91
Максимкин О.П., 39
Маруяма Ю., 8
Мукенева С.А., 98
Мульгин С.И., 49
Нагасака Х., 8
Пеньков Ф.М., 75
Перепелкин И.Г., 102
Пивоваров С.П., 85
Плаксин Д.А., 32
Платов А.В., 85
Райханов Н.А., 105
Русаков В.С., 32
Русанов А.Я., 49
Смайлов Е.К., 91
Солодухин В.П., 85
Стороженко А.Н., 102
Такибаев Ж.С., 5
Такибаев Н.Ж., 75
Тихомиров Л.Н., 19, 105
Тулеушев Ю.Ж., 71
Тур Е.С., 94, 98
Туркебаев Т.Э., 32, 43, 45
Турубарова Л.Г., 39
Хажекбер С., 85
Чакров П.В., 85
Чумиков Г.Н., 85
Щербина А.Н., 28
Якушев Г.М., 85
Яровчук А.В., 39

ТРЕБОВАНИЯ К ОФОРМЛЕНИЮ СТАТЕЙ

Статьи предоставляются в виде электронной (на гибком диске или по электронной почте присоединенным (attachment) файлом) в формате MS WORD и печатной копии.

Текст печатается на листах формата А4 (210×297 мм) с полями: сверху 30 мм; снизу 30 мм; слева 25 мм; справа 15 мм, на принтере с высоким разрешением (300-600 dpi).

Используются шрифт Times New Roman высотой 10 пунктов для обычного текста и 12 пунктов для заголовков.

Текст печатается через один интервал, между абзацами 2 интервала.

В левом верхнем углу должен быть указан индекс УДК. Название статьи печатается ниже заглавными буквами. Через 3 интервала после названия, печатаются фамилии, имена, отчества авторов и полное наименование, город и страна местонахождения организации, которую они представляют. После этого, отступив 3 интервала, печатается основной текст.

При написании статей необходимо придерживаться следующих требований:

- статья должна содержать аннотации на казахском, английском и русском языках (130-150 слов) с указанием названия статьи, фамилии, имени, отчества авторов и полного названия, города и страны местонахождения организации, которую они представляют;
- ссылки на литературные источники даются в тексте статьи цифрами в квадратных [1] скобках по мере упоминания. Список литературы следует привести по ГОСТу;
- иллюстрации (графики, схемы, диаграммы) должны быть выполнены на компьютере или в виде четких чертежей, выполненных тушью на белом листе формата А4. На обороте рисунка проставляется его номер. В рукописном варианте на полях указывается место размещения рисунка;
- математические формулы в тексте должны быть набраны как объект Microsoft Equation. Химические формулы и символы должны быть набраны при помощи инструментов Microsoft Word. Следует нумеровать лишь те формулы, на которые имеются ссылки.

К статье прилагаются следующие документы:

- рецензия высококвалифицированного специалиста (доктора наук) в соответствующей отрасли науки;
- выписка из протокола заседания кафедры или методического совета с рекомендацией к печати;
- на отдельном листе автор сообщает сведения о себе: фамилия, имя, отчество, ученая степень, должность, кафедра и указывает служебный и домашний телефоны, адрес электронной почты.

Текст должен быть тщательным образом выверен и отредактирован. В конце статья должна быть подписана автором с указанием домашнего адреса и номеров служебного и домашнего телефонов, адрес электронной почты.

Статьи, оформление которых не соответствует указанным требованиям, к публикации не допускаются.

Ответственный секретарь к.ф.-м.н. М.К. Мукушева
тел. (095) 745-54-04, (322-51) 2-33-35, E-mail: MUKUSHEVA@NNC.KZ

Технический редактор А.Г. Кислухин
тел. (322-51) 2-33-33, E-mail: KISLUHIN@NNC.KZ

Адрес редакции: 490060, Казахстан, г. Курчатов, ул. Ленина, 6.

© Редакция сборника «Вестник НЯЦ РК», 2001.

Регистрационное свидетельство №1203-Ж от 15.04.2000г.
Выдано Министерством культуры, информации и общественного согласия Республики Казахстан

Тираж 300 экз.

Выпуск набран и отпечатан в типографии
Национального ядерного центра Республики Казахстан
490060, Казахстан, г. Курчатов, ул. Ленина, 6.