

На правах рукописи

**ВАСИЛЬЕВ Игорь Владимирович**

**ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ КАРБОНИТРИДА  
УРАНА С ТУГОПЛАВКИМИ МЕТАЛЛАМИ ПОД ОБЛУЧЕНИЕМ**

Специальность 05.14.03 – Ядерные энергетические установки, включая  
проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации

Автореферат  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата технических наук

Москва – 2012

Работа выполнена в «Национальном исследовательском центре «Курчатовский институт»

Научный руководитель: Иванов Александр Сергеевич,  
доктор физико-математических наук,  
профессор, начальник отдела ОВРМН ИПЭТ  
НИЦ «Курчатовский институт»

Официальные оппоненты: Шимкевич Александр Львович,  
доктор физико-математических наук,  
директор отделения ОРТТЦ ИПЭТ  
НИЦ «Курчатовский институт»

Никонов Анатолий Маркиянович  
кандидат технических наук  
начальник лаборатории  
ОАО «Красная звезда»

Ведущая организация: ФГУП «НИИ НПО «Луч»

Защита состоится “ \_\_\_\_ ” \_\_\_\_\_ 2013 г. в \_\_\_\_ ч. \_\_\_\_ мин. на заседании диссертационного совета Д 520.009.06 в Федеральном государственном бюджетном учреждении «Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт» по адресу: 123182, г. Москва, пл. Курчатов, д. 1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЦ «Курчатовский институт»

Автореферат разослан “ \_\_\_\_ ” \_\_\_\_\_ 2013 г.

Ученый секретарь диссертационного совета  
доктор технических наук, профессор

В.Г. Мадеев

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### Актуальность работы

При разработке проекта ядерной энергодвигательной установки (ЯЭДУ) мегаваттного класса на начальном этапе рассматривается возможность использования в качестве топлива двух наиболее перспективных материалов – карбонитрида урана и диоксида урана, позволяющих надеяться на решение поставленных задач. Одной из основ для такого выбора могут служить результаты реакторных испытаний топлив, проведенные ранее в близких температурных режимах в составе электрогенерирующих каналов (ЭГК) опытных установок Я-81 и Я-82, входивших в программу экспериментальной отработки КЯЭУ «Енисей» [1].

В настоящее время в нашем распоряжении имеются образцы, состоящие из элементов карбонитридного топлива и оболочки из сплава МН-3 (Мо + 3% Nb), вырезанные из ЭГК №30, прошедшего реакторные испытания в составе установки Я-82 в течение 8300 часов. Ранее было обнаружено проникновение урана в оболочку при температуре испытаний 1500°С и проведен ряд других послереакторных исследований [2]. Однако диффузия углерода и азота в оболочку не рассматривалась. Не рассматривалось также возможное проникновение в оболочку продуктов деления, в частности Cs<sup>137</sup>.

Известно, что на процесс диффузионного переноса существенное влияние оказывает наличие структурных дефектов. Коэффициент диффузии может меняться на порядки величины. Если в поликристаллических материалах дефектов достаточно много (границы зерен, дислокации и пр.), то в используемых монокристаллических оболочках, они, возможно, присутствуют в заметных количествах только в области сварных соединений. В условиях реакторного облучения имеет место генерация дефектов. В связи с этим реакторное облучение может оказывать существенно большее влияние на коэффициенты переноса в монокристаллических образцах по сравнению с поликристаллами. Поэтому получение дополнительной информации о влиянии реакторного облучения на диффузионный перенос углерода и азота в монокристаллических оболочках ТВЭЛ представляется весьма важной задачей. Это особенно важно в связи с необходимостью обоснования результатов вне реакторных ускоренных тепловых испытаний на совместимость топлива и оболочки.

Следует также обратить внимание на диффузию углерода и азота в оболочку из МН-3 в связи с существующей возможностью образования дисперсных включений высокотемпературных карбидов и нитридов ниобия в

молибденовой матрице в условиях реакторного облучения. Образование включений дисперсной фазы может оказать существенное влияние на вязкопластическое поведение оболочки в процессе распухания топлива в рабочих условиях. Косвенным свидетельством этого могут служить некоторые результаты прочностных исследований, выполненные на кольцевых образцах оболочки ЭГК №30.

Актуальность данной работы обусловлена возможностью использования результатов реакторных испытаний совместимости системы «монокристаллическая молибденовая оболочка + карбонитридное топливо» при разработке реактора мегаваттного класса для космического применения. В связи с тем, что реакторное облучение может оказывать существенно большее влияние на коэффициенты переноса в монокристаллических образцах по сравнению с поликристаллами, получение дополнительной информации о влиянии реакторного облучения на диффузионный перенос и распределение элементов системы в монокристаллических оболочках ТВЭЛ представляется весьма важной задачей. Кроме того, результаты работы могут найти применение в инновационных разработках реакторов на быстрых нейтронах с карбонитридным топливом.

### **Цель работы**

1. Проведение исследований структуры и распределения ряда компонентов (U, Mo, Nb, Cs, C, N) в образцах оболочки ТВЭЛ из монокристаллического сплава МН-3, прошедшей ядерные энергетические испытания в составе установки Я-82 при температуре 1500°С, с использованием метода локального рентгеноспектрального анализа (ЛРСА) с помощью модернизированного микроанализатора MAP-3.

2. Анализ и интерпретация полученных экспериментальных данных на базе апробированных моделей физических процессов.

3. Оценка возможности использования полученных результатов реакторных испытаний для прогнозирования эксплуатационной надежности монокристаллических молибденовых оболочек ТВЭЛ с карбонитридным топливом в высокотемпературных реакторах.

### **Объект и предмет исследования**

Объектом исследования была оболочка из сплава МН-3 ЭГК №30, прошедшего реакторные испытания в составе установки Я-82.

Предметом исследования являлась структура материала и распределение ряда компонентов (U, Mo, Nb, Cs, C, N) в образцах оболочки.

## **Научная новизна**

1. Исследуемые образцы уникальны. На установке Я-82 было только 2 ЭГК с карбонитридным топливом. Других образцов, прошедших реакторные испытания в течение 8300 часов при температуре 1500°С, для изучения взаимодействия карбонитридного топлива с монокристаллической молибденовой оболочкой в России не существует.

2. Проведенные ранее послереакторные исследования оболочки ЭГК №30 выявили проникновения урана в оболочку. Однако анализ этого явления выполнен не был. Нами проведено детальное исследование проникновения урана и обнаружены немонотонные концентрационные профили распределения урана. Дано непротиворечивое объяснение наблюдавшемуся эффекту, основанное на появлении поликристаллической структуры в приповерхностной области монокристалла. Впервые исследованы распределения целого ряда компонентов (U, Mo, Nb, Cs, C, N) рассматриваемой системы.

3. Нами были получены результаты по изменению кристаллической структуры монокристаллической молибденовой оболочки в процессе реакторных испытаний. На границах слоев наблюдается скопление пор и других дефектов. Найдены области с повышенным содержанием углерода, обнаружено проникновение цезия из межэлектродного зазора в вольфрам внешнего покрытия оболочки, и зафиксировано наличие азота в области, занимаемой вольфрамом. Эти результаты получены впервые и ставят серьезные вопросы перед разработчиками тепловыделяющих элементов, без решения которых проблема создания данного вида тепловыделяющих элементов, предназначенных для эксплуатации на срок более года, не может быть решена.

4. Проведено моделирование эволюции пор в топливной оболочке ЭГК, объясняющее скопление пор на границе слоев и предсказывающее поведение пористой системы на времена большие 8300 часов.

5. Существенная немонотонность концентрационного профиля урана, наблюдавшаяся в наших экспериментах, объяснена наличием поликристаллической структуры оболочки в приповерхностной области с ее внутренней стороны.

## **Практическая значимость работы**

Результаты исследования образцов ТВЭЛ с карбонитридным топливом в монокристаллической молибденовой оболочке, прошедших реакторные испытания в установке Я-82 в течение 8300 часов при температуре 1500°С, могут быть использованы при проектировании высокотемпературных быстрых

реакторов и, в частности, при разработке проекта космической ЯЭУ мегаваттного класса. Ряд полученных результатов показывает, что предлагаемые для использования оболочки из тугоплавких металлов хоть и справляются со своей задачей при длительности эксплуатации 8300 часов, но возникают вопросы об их соответствии требованиям эксплуатационной надежности при увеличении ресурса. Кроме этого, в диссертации развит методический подход по комплексному анализу физико-химического состояния оболочки ТВЭЛ после реакторных испытаний, который может быть использован при создании высокотемпературных реакторов нового поколения. Что касается научной значимости, то были обнаружены новые физические эффекты в поведении молибденовой оболочки под облучением, в том числе образование поликристаллической структуры в приповерхностной области монокристалла и немонотонное проникновение урана в оболочку.

Представлены модели, позволяющие дать непротиворечивое объяснение некоторым наблюдавшимся физическим эффектам.

### **Степень достоверности полученных результатов**

Использованный метод ЛРСА для исследования распределения химических элементов в твердом теле совершенствовался на протяжении многих лет в многочисленных исследованиях материалов различной структуры. В настоящих исследованиях использовали модернизированный микрозонд МАР-3, на котором была проведена серия тестовых измерений. Для надежности определения концентраций компонентов и соответствующей нормировки интенсивностей линий характеристического рентгеновского излучения (х. р. и.), каждое измерение проводили сначала на эталонном образце, который представляет собой чистое химическое соединение без примесей с заранее известной структурой. Исследуемый образец оболочки изучали не на одном, а на нескольких участках так, чтобы сформировать как можно более точную и полную картину о структуре и элементном составе образца. Расчетные исследования по объяснению наблюдавшихся физических эффектов выполнены на базе апробированных моделей.

### **Положения, выносимые на защиту**

1. Результаты экспериментального исследования структуры и распределения ряда компонентов (U, Mo, Nb, Cs, C, N) в образцах оболочки ЭГК №30, полученные методом ЛРСА с помощью модернизированного микроанализатора МАР-3.

1.1. Обнаружена слоистая структура оболочки. Причина возникновения слоистой структуры, по-видимому, связана с воздействием реакторного

облучения и переходом монокристалла в поликристаллическое состояние вблизи внутренней поверхности оболочки.

1.2. На границах слоев наблюдаются скопления пор и других дефектов. Декорирование границ раздела слоев, вероятно, произошло в процессе реакторных испытаний.

1.3. Установлено, что концентрационные профили урана в различных проходах (различных местах образца) качественно различны. Всего наблюдали три вида профилей. Во-первых, это отсутствие заметного проникновения урана над уровнем фона. Во-вторых, это монотонно спадающие профили, соответствующие диффузионному проникновению урана и, в-третьих, немонотонные концентрационные профили.

1.4. Глубина проникновения урана в оболочку составляет  $\sim 100 \mu\text{m}$ . В слое, который можно интерпретировать, как монокристаллический, заметной концентрации урана не обнаружено.

1.5. Наблюдается корреляция в концентрационных профилях урана и молибдена. Подъему концентрации урана соответствует спад концентрации молибдена и наоборот. При этом концентрация ниобия остается постоянной.

1.6. Обнаружено проникновение Cs в вольфрамовое покрытие и молибденовую оболочку из межэлектродного зазора. Распределение Cs носит диффузионный характер.

1.7. Обнаружены области с повышенным содержанием углерода. Области представляют собой протяженные образования с повышенным содержанием углерода не диффузионного характера. Вероятно, что в этих областях имеет место карбидизация молибдена.

1.8. При изучении распределения азота обнаружено два вида концентрационных профилей. При всех проходах наблюдали ступенчатое повышение концентрации азота в области, занимаемой вольфрамом, что, вероятно, свидетельствует о наличии нитридных включений в вольфрамовом покрытии. По-видимому, эти включения имеют технологическое происхождение. В одном случае наблюдали повышенную концентрацию азота вблизи границы оболочки со стороны топлива. Профиль концентрации в этом случае носил диффузионный характер и соответствовал проникновению азота в оболочку из топлива путем диффузии в области контакта.

2. Обнаруженное в настоящей работе декорирование границ раздела порами, объяснено с использованием теории коалесценции. Оценка среднего размера пор, возникающих в условиях эксперимента, дает значение  $\sim 2 \mu\text{m}$ , что

согласуется с полученными экспериментальными данными. Представлены прогнозные оценки поведения пористой системы и набухания материала оболочки для ядерной энергетической установки мегаваттного класса.

3. Коэффициенты диффузии урана в оболочку практически совпадают с коэффициентами диффузии, измеренными ранее для диффузии урана в поликристалл молибдена. Существенная немонотонность концентрационного профиля урана, наблюдавшаяся в наших экспериментах, может быть объяснена наличием поликристаллической структуры оболочки в приповерхностной области с ее внутренней стороны.

4. Полученные результаты показывают, что оболочки ТВЭЛ из сплава МН-3 при взаимодействии с карбонитридным топливом отвечают критериям эксплуатационной надежности при длительности эксплуатации 8300 часов. Однако при резком увеличении ресурса обосновать их эксплуатационную надежность без дополнительных реакторных испытаний не представляется возможным.

### **Апробация работы**

Основные положения, сформулированные в диссертационной работе, были доложены на 9-й и 10-й Курчатовских молодежных научных школах (2011 и 2012 г., г. Москва). Так же полученные результаты были представлены на соискание премии им. академика А.П. Александрова (конкурс научных работ Курчатовского центра ядерных технологий НИЦ «Курчатовский институт») за 2012 год. Решением жюри конкурса от 01.02.2013, решением НТС КЦЯТ от 19.02.2013 и указанием КЦЯТ № 200-03/6 от 19.02.2013 представленный труд был награжден дипломом, как лучшая научная работа.

### **Публикации**

Результаты, полученные в ходе работы над диссертацией, опубликованы в 5 печатных работах, включая 3 статьи в рецензируемых научных журналах (список публикаций приведен в конце автореферата).

### **Структура и объём диссертации**

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и списка литературы. Работа содержит 97 страниц, 35 рисунков. Библиография включает 81 наименование.

### **Личный вклад автора**

Автор диссертации принимал участие в постановке научных задач. При его непосредственном участии проводилась подготовка образцов и



микрондвые экспериментальные исследования. Автор принимал активное участие в обработке экспериментальных данных и их анализе.

Автором выполнены расчетно-аналитические исследования по объяснению ряда наблюдавшихся в эксперименте физических явлений, в том числе эффекта декорирования порами границ раздела фаз и диффузионных процессов в оболочке.

Все представленные в диссертации результаты получены при непосредственном участии автора. На основании результатов исследования и их анализа автором сформулированы и обоснованы выводы и заключения, вошедшие в диссертацию.

### **Благодарности**

Автор искренне признателен научному руководителю д.ф.-м.н., профессору А.С. Иванову за постановку задач и постоянное внимание к работе. Автор благодарен В.А. Чуринову и В.Б. Кайнову, за помощь в подготовке и проведении экспериментальных исследований.

## **СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

Во **Введении** обосновывается выбор темы работы, её актуальность, формулируется цель работы и задачи, показана научная и практическая значимость работы, а также основные положения, выносимые на защиту.

В **Первой главе «Имеющиеся данные по реакторному взаимодействию карбонитрида урана с тугоплавкими металлами»** представлен литературный обзор по теме диссертации.

В **разделе 1.1** рассмотрены реакторные испытания, проведенные на установке Я-82.

**Раздел 1.2** посвящен послереакторным материаловедческим исследованиям топлива из уран-циркониевого карбонитрида. Исследовались таблетки топлива из  $(U,Zr)CN$  следующего состава (% вес):

- уран - 87,6%
- цирконий - 5,7%
- углерод - 2,2%
- азот - 3,1%
- кислород - 0,3%

В **разделе 1.3** приведены предварительные результаты, полученные в ходе послереакторных испытаний. Дан сравнительный анализ деформационного

поведения ТВЭЛ на основе диоксидного топлива ( $UO_2$ ) и уран-циркониевого карбонитрида  $(U,Zr)C,N$  при одинаковых режимах испытаний. Описаны полученные результаты по проникновению урана из карбонитридного топлива в оболочку. Так же приведены литературные данные по растворимости компонентов карбонитридного топлива в тугоплавких металлах.

**Раздел 1.4** посвящен обзору диффузионных процессов и влиянию облучения на диффузию. Рассматривается диффузия металлических атомов, углерода и азота в тугоплавких металлах.

В **разделе 1.5** приведен обзор теории порообразования и распухания материалов в процессе облучения.

**Раздел 1.6** содержит заключение к **Главе 1**. Ранее было обнаружено проникновение урана в оболочку ТВЭЛ при температуре испытаний  $1500^\circ C$ , однако, этот вопрос детально не исследован. Не определены коэффициенты диффузии урана в монокристаллический сплав МН-3 в условиях реакторного облучения. Вместе с тем диффузия углерода и азота в оболочку вообще не рассматривалась. Не рассматривалось также возможное проникновение в оболочку продуктов деления, в частности  $Cs^{137}$ .

**Вторая глава «Методы и оборудование для проведения исследования»** посвящена описанию модернизированного микроанализатора MAP-3, метода ЛРСА, его чувствительности, а так же подготовке эталонов.

В **разделе 2.1** представлена методика измерения концентраций компонентов. Описан метод ЛРСА и его физические основания. Рентгеноспектральный метод определения концентраций элементов [3] основан на сравнении величин максимумов интенсивностей спектральных линий характеристического рентгеновского излучения K, L и M серий элементов, возбуждаемых в образце с известной концентрацией и в анализируемом образце с неизвестной концентрацией. Отношение величин максимумов интенсивностей получило название "K-отношение". По известному K-отношению стандартная методика PAP (или ZAF) [4] позволяет рассчитать весовые (или атомные) концентрации элементов анализируемого образца.

В **разделе 2.2** дается оценка чувствительности метода [5]. Разрешение метода по поверхности образца достигает значений от  $5.0 \cdot 10^{-7}$  м до  $5.0 \cdot 10^{-6}$  м; разрешение по глубине достигает значений от  $5.0 \cdot 10^{-7}$  м до  $2.0 \cdot 10^{-6}$  м [3].

В **разделе 2.3** приводится описание модернизированного микроанализатора MAP-3.

**Раздел 2.4** посвящен вопросу подготовки эталонов, где показано, что по

каждому из исследуемых элементов у нас есть эталон с известным составом.

**Раздел 2.5** содержит заключение к **Главе 2**. Приведенная в **Разделе 2.1** методика отработывалась в течение многих лет на различных химических соединениях и сплавах. Чувствительность метода, как показано в **Разделе 2.2**, позволяет определять легких элементы и даже азот. Модернизированный микроанализатор MAP-3 отлично подходит для решения поставленной задачи по исследованию оболочки ЭГК поскольку локальность метода позволяет анализировать пространственное изменение концентраций компонентов в масштабах, соответствующих характерным диффузионным длинам процессов в оболочке ТВЭЛ, а чувствительность вполне достаточна для выявления концентрационных эффектов.

В **Третьей главе «Результаты исследований»** приводятся результаты экспериментального исследования структуры и распределения ряда компонентов (U, Mo, Nb, Cs, C, N) в образцах оболочки ЭГК №30[6].

В **разделе 3.1** приведено описание исследуемых образцов и их подготовка.

В **пункте 3.1.1** описана подготовка шлифов, как облученных, так и необлученных шлифов.

В **пункте 3.1.2** представлены результаты съемки поверхностей облученной и необлученной оболочек. Снимок поверхности облученного образца в растровом режиме представлен на рис. 1.

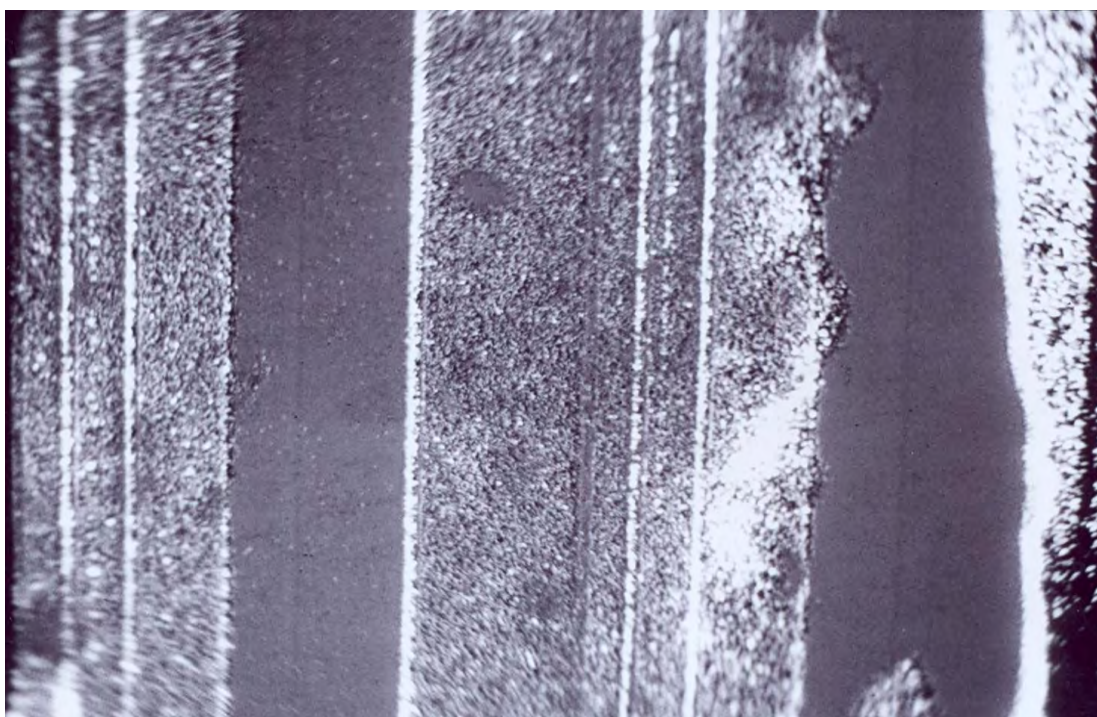


Рис. 1. Растровая фотография поверхности шлифа оболочки ЭГК.

Из фотоснимка (рис.1) видно, что поверхность образца имеет слоистую кольцеобразную структуру, возможно, из поликристаллического и монокристаллического Мо (ниже приводятся экспериментальные данные, свидетельствующие в пользу этого предположения). В некоторых слоях видны смешанные области и участки с отсутствием четкой, цилиндрической границы раздела слоев. Причина возникновения слоистой структуры может быть связана как с технологией производства монокристаллических оболочек, так и с воздействием реакторного облучения и переходом монокристалла в поликристаллическое состояние. На границах слоев наблюдаются скопления пор и других дефектов. Декорирование границ раздела слоев, вероятно, произошло в процессе реакторных испытаний.

Для того, чтобы подтвердить полученные результаты была произведена съемка исходных образцов оболочки. Исследования проводили на сканирующем электронном микроскопе LEO 1430. На снимках поверхность шлифа представляет собой довольно однородную структуру, равномерно покрытую кавернами, по-видимому, ростового происхождения. Границы раздела фаз на данных снимках отсутствуют.

В разделе 3.2 описаны параметры рентгеноспектрального микроанализа. Микроанализ проводился при ускоряющем напряжении 35 кВ и диаметре зонда -  $10^3$  нм. В качестве кристалла - анализатора на элемент U использован LiF; на элементы Мо, Nb, Cs - кристалл PET и рентгеновское зеркало - для анализа на С и N. Колонна анализатора откачивалась сорбционными насосами до давления  $2 \cdot 10^{-6}$  мм. рт. ст., а спектрометры до  $2 \cdot 10^{-4}$  мм. рт. ст. Включалась и юстировалась электроннооптическая система анализатора. Положение и диаметр электронного пучка контролировались визуально по свечению кристалла-флюорита. В режиме шлюзования образцов съемная часть столика устанавливалась на столик образцов анализатора.

Записи интенсивностей линий х.р.и. проводились в режиме перемещения образца со скоростью  $\sim 10^3$  нм/с. Начало перемещения образца совпадало с границей раздела топлива и оболочки. Интенсивность х.р.и. в вольтах с величинами пропорциональными 1 микрон длины образца. Для каждого анализируемого элемента получено не менее пяти записей интенсивностей. Расчет весовых концентраций элементов проводился согласно приведенной выше методике.

При исследовании распределений компонентов в топливе выполняли не менее пяти радиальных проходов в различных местах исследуемого образца.

В разделе 3.3 приведены результаты изучения распределения урана, ниобия и молибдена. На рисунке 2 представлен типичный результат для двух проходов, в которых распределение урана по образцу было равномерно и не превышало фоновых значений. Координаты начала отсчета совпадают с границей оболочки, контактирующей с топливом.

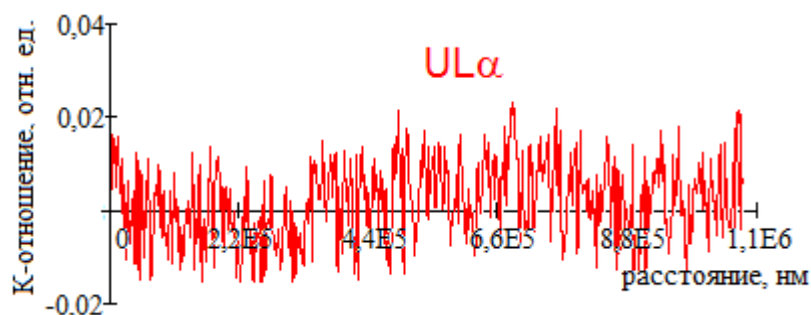


Рис. 2. График зависимость K-отношения линии  $U_{L\alpha}$  от расстояния.

Наличие областей, в которых мы не обнаруживаем присутствия урана в количествах, превышающих фоновые значения, может свидетельствовать об отсутствии контакта оболочки с топливом в данном месте в процессе реакторных испытаний. По-видимому, для проникновения урана в молибден в рассматриваемых условиях необходим контакт оболочки и топлива.

На рисунках 3 и 4 представлены разновидности типичных графиков зависимости K-отношений линии  $U_{L\alpha}$  для проходов, где распределение урана носило неравномерный характер. На рис. 4 также представлены графики зависимости K-отношений линий х.р.и.  $Mo_{L\alpha}$  и  $Nb_{L\alpha}$ .

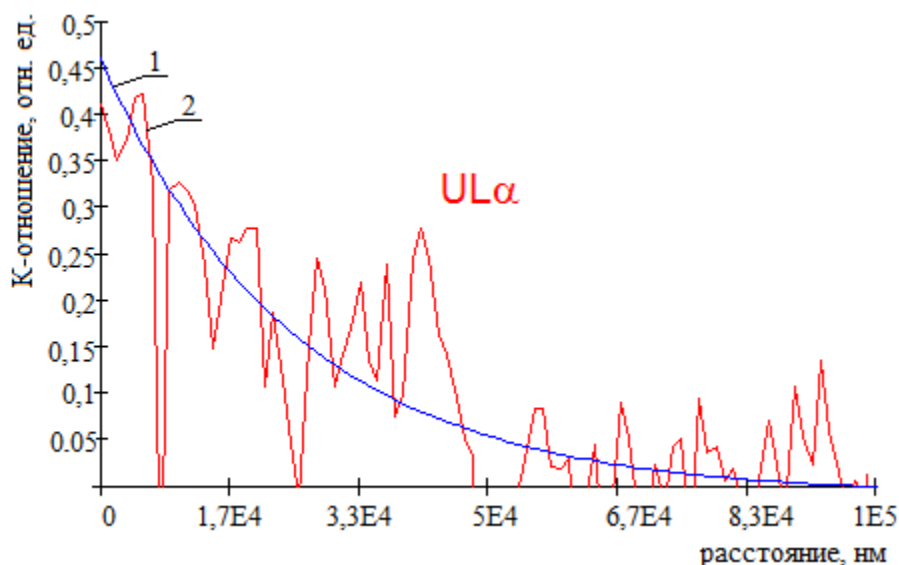


Рис. 3. Графики экспериментальной (2) и аппроксимационной (1) кривых K-отношений линии  $U_{L\alpha}$  от расстояния.

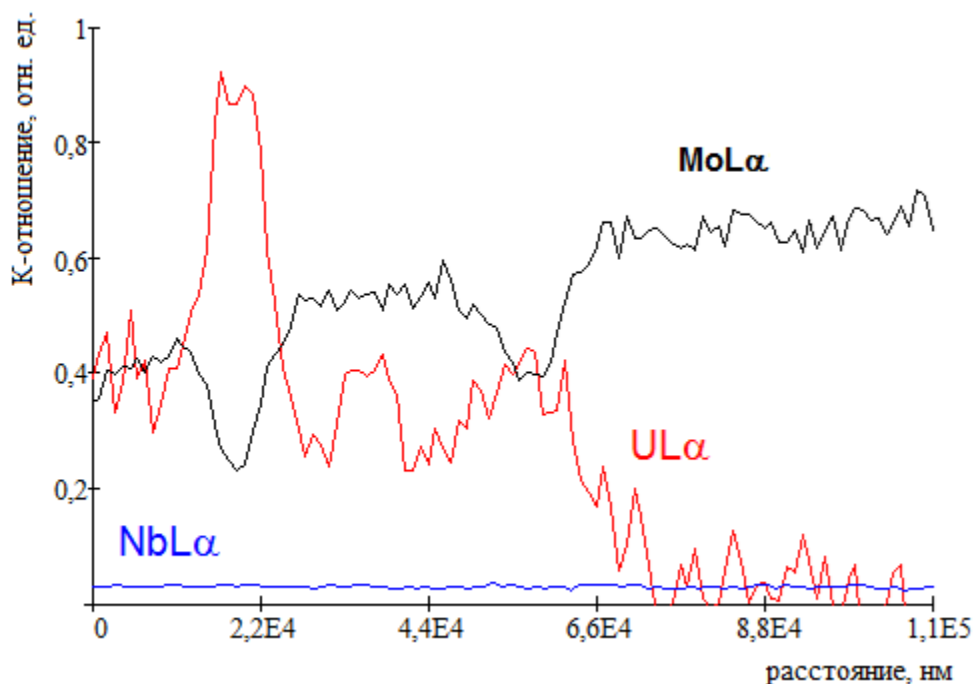


Рис. 4. Графики зависимости K-отношений линий  $U_{L\alpha}$ ,  $Mo_{L\alpha}$  и  $Nb_{L\alpha}$  от расстояния.

В соответствии с рисунками 2, 3 и 4 участки оболочки делятся на участки с отсутствием методически определяемой концентрации урана (рис. 2), по-видимому, соответствующие областям с отсутствием контакта оболочки и топлива и участки где уран четко определяется методически (рис. 3 и 4), соответствующие местам контакта топлива и оболочки. В связи с этим интересно провести термодинамическую оценку состава топлива и газовой фазы в зазоре между топливом и оболочкой. Расчет по программе PAR показывает, что в местах контакта оболочки и топлива концентрация урана на границе раздела топливо-оболочка достигает значения  $\sim 47$  вес % и падает до уровня фона в первом монокристаллическом слое молибдена. Глубина проникновения урана в оболочку достигает  $\sim 100$  мкм. Согласно пересчитанным данным рисунка 20 концентрация Mo в областях повышенной концентрации U падает до уровня  $\sim 42$  вес. %. За пределами области диффузии урана молибден распределен равномерно. Концентрация Nb по сечению оболочки практически постоянна и достигает величины  $\sim 3,1$  вес. %.

Таким образом, можно считать установленным, что концентрационные профили урана в различных проходах (различных местах образца) качественно различны. Всего наблюдали три вида профилей. Во-первых, это отсутствие заметного проникновения урана над уровнем фона. Во-вторых, это профили,

соответствующие диффузионному проникновению урана и, в-третьих, немонотонные концентрационные профили.

Глубина проникновения урана в оболочку составляет  $\sim 100$  мкм. В слое, который можно интерпретировать, как монокристаллический, заметной концентрации урана не обнаружено. Наблюдается корреляция в концентрационных профилях урана и молибдена. Подъему концентрации урана соответствует спад концентрации молибдена и наоборот. При этом концентрация ниобия остается постоянной. Подъемы концентрации урана находятся вблизи границ наблюдавшихся слоев. Это свидетельствует о наличии некоторого механизма образования обогащенных ураном включений на границах раздела слоев.

В разделе 3.4 приведены результаты изучения распределения азота. На рис. 5 приведен график зависимости К-отношения линии азота  $N_{K\alpha}$ .

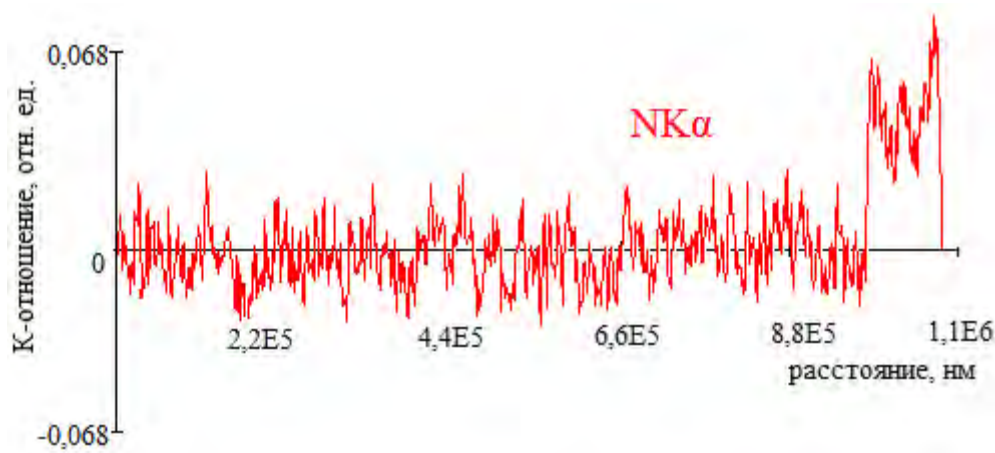


Рис. 5. График зависимость К-отношения линии  $N_{K\alpha}$  от расстояния.

На рисунке 5 прослеживается скопление N на внешнем W кольце. РАР расчет подтверждает, что мы видим именно скопление азота, а не переход с Mo на W, т. к. иначе К-отношение было бы меньше на W, чем на Mo. Распределение азота носит скорее ступенчатый, а не диффузионный характер и область его распространения практически совпадает с толщиной вольфрамового покрытия. Поэтому естественно предположить, что азот оказался в вольфрамовом покрытии в процессе изготовления, т.е. вероятно присутствие нитридной фазы вольфрама. Кроме того, в пользу существования нитридной фазы, т.е. связанного состояния азота, говорит большое значение коэффициента диффузии азота в вольфраме. Характерное время диффузионного выхода азота из вольфрамового покрытия толщиной 0,01 см, если бы он присутствовал там, в виде твердого раствора, составляет  $\sim 100$  с, что несопоставимо меньше длительности реакторных испытаний.

В разделе 3.5 приведены результаты изучения распределения углерода. На рисунке 6 представлен характерный график зависимости К-отношения линии углерода  $S_{K\alpha}$  для трех проходов.

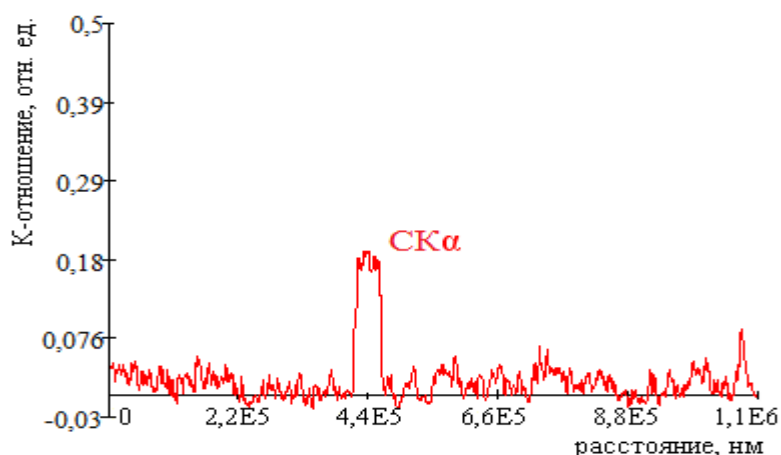


Рис. 6. График зависимость К-отношения линии  $S_{K\alpha}$  от расстояния.

Из рисунка 6 видно, что концентрация  $S$  по всему сечению оболочки неравномерна и существуют области шириной до  $\sim 10^{-4}$  м. где концентрация углерода существенна. Согласно расчетам РАР для  $S$  в  $Mo$ , выполненным по К-отношениям рисунков 6, концентрация углерода достигает величины  $\sim 20$  вес. %. Это свидетельствует о возможной карбидизации с образованием карбида молибдена. Необходимо отметить, что возможность образования карбидных фаз в молибдене при высокой температуре подвергалась сомнению [7]. Однако приведенные аргументы в пользу такого утверждения опирались на результаты тепловых испытаний и соответствующих расчетов и не учитывали возможность стабилизации этих фаз в условиях реакторного облучения.

Помимо возможности образования карбидных фаз в условиях реакторных испытаний есть еще два объяснения наличия областей с углеродом в облученной оболочке. Во-первых, технология изготовления оболочек может включать в себя и добавление углерода, хотя по паспорту состав оболочек чистый сплав МН-3 без примесей. Во-вторых, при изготовлении шлифа в дефект оболочки мог попасть абразив. Так как используются алмазные пасты для изготовления шлифов, то наличие углерода может объясняться наличием набившегося в дефекты оболочки абразива. Правда мы получили, что области с углеродом шириной  $\sim 10^{-4}$  м, а размер абразива не превышает 10 мкм, что дает повод усомниться и в этом предположении.

В разделе 3.6 приведены результаты изучение распределения цезия. В пункте 3.6.1 описано измерение активности радионуклидов в образцах оболочки. Цель измерений – определить наличие радионуклида  $Cs^{137}$  в



оболочке перед микронзондовыми исследованиями. Измерения активности радионуклидов в образцах проводили на гамма-спектрометре, основными компонентами которого являются элементы фирмы EG&G ORTEC (USA). Проведенные измерения показали наличие  $Cs^{137}$  во всех образцах. Удельная активность изотопа в двух из них оказалась на два порядка ниже активности в двух других. Вероятно, образцы с большей удельной активностью принадлежали участкам оболочки, непосредственно контактировавшим с топливом.

В пункте 3.6.2 даны результаты изучения распределения цезия с помощью микронзонда. На рисунке 7 представлен типичный график зависимости К-отношения линии  $Cs_{L\alpha}$ .

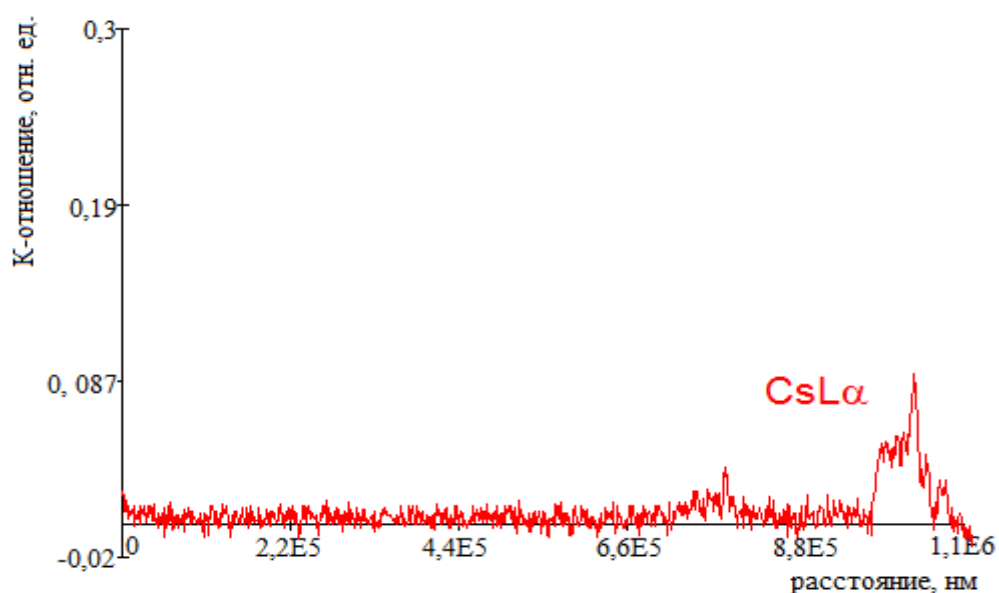


Рис. 7. График зависимости К-отношения линии  $Cs_{L\alpha}$  от расстояния.

Согласно результатам расчетов, концентрация Cs по сечению оболочки изменяется от ~ 10 вес. % на внешнем W кольце оболочки до уровня фона в области границы топлива и оболочки, проникая на глубину ~  $10^{-3}$  м. Дело в том, что Cs является рабочим телом ЭГК и в большом количестве присутствует в межэлектродном зазоре, непосредственно контактируя с вольфрамовым покрытием оболочки. По-видимому, имела место активная диффузия Cs через слои оболочки с коэффициентом диффузии ~  $10^{-10}$   $см^2/с$  [8].

**Раздел 3.7** содержит заключение к **Главе 3**. Были изучены: структура образцов и распределение U, Mo, Nb, Cs, S и N по толщине оболочки. Рентгеноспектральный микроанализ образцов проведен на модернизированной установке MAP-3.

Были получены следующие результаты:

1. Обнаружена слоистая структура оболочки в образце, прошедшем реакторные испытания. Причина возникновения слоистой структуры, по-видимому, связана с воздействием реакторного облучения и переходом монокристалла в поликристаллическое состояние.

2. На границах слоев наблюдаются скопления пор и других дефектов. Декорирование границ раздела слоев, вероятно, произошло в процессе реакторных испытаний.

3. Установлено, что концентрационные профили урана в различных проходах (различных местах образца) качественно различны. Всего наблюдали три вида профилей. Во-первых, это отсутствие заметного проникновения урана над уровнем фона. Во-вторых, это монотонно спадающие профили, соответствующие диффузионному проникновению урана и, в-третьих, немонотонные концентрационные профили.

4. Глубина проникновения урана в оболочку составляет  $\sim 10^5$  нм. В слое, который можно интерпретировать, как монокристаллический, заметной концентрации урана не обнаружено.

5. Наблюдается корреляция в концентрационных профилях урана и молибдена. Подъему концентрации урана соответствует спад концентрации молибдена и наоборот. При этом концентрация ниобия остается постоянной.

6. Подъемы концентрации урана находятся вблизи границ наблюдавшихся слоев. Это свидетельствует о наличии зерен молибдена в оболочке.

7. Обнаружено проникновение цезия в вольфрамовое покрытие и молибденовую оболочку из межэлектродного зазора. Распределение цезия носит диффузионный характер.

8. Обнаружены области с повышенным содержанием углерода. Области представляют собой протяженные образования с повышенным содержанием углерода не диффузионного характера.

9. При изучении распределения азота обнаружено два вида концентрационных профилей. При всех проходах наблюдали ступенчатое повышение концентрации азота в области, занимаемой вольфрамом, что, вероятно, свидетельствует о наличии нитридных включений в вольфрамовом покрытии. По-видимому, эти включения имеют технологическое происхождение.

Согласно полученным результатам исследования взаимодействия оболочки МН-3 с карбонитридным топливом в процессе реакторных испытаний

проблема совместимости топлива и оболочки применительно к высокотемпературному ТВЭЛ ЯЭДУ мегаваттного класса представляется достаточно сложной и многоплановой. Для выяснения механизма накопления дефектов на границах раздела слоев и аномалий в диффузионном поведении элементов, необходимо проведение аналитических исследований, которые будут выполнены в следующих главах диссертации.

**В Четвертой главе «Процесс порообразования в материале оболочки в условиях реакторного облучения»** представлены результаты моделирования эволюции пор в оболочке электрогенерирующего канала. Методом растровой электронной микроскопии обнаружена слоистая структура оболочки. На границах слоев наблюдаются скопления пор и других дефектов. На рисунке 1 представлена фотография поверхности образца с четко определяемой границей раздела между поликристаллическим и монокристаллическим слоями молибдена в образце. Черные точки на границе между слоями нами интерпретируются как поры. Происходит декорирование границы порами. **В Главе 4** представлено объяснение механизма эволюции пор в оболочке при проведении реакторных испытаний, приводящего к наблюдаемому нами эффекту.

**В разделе 4.1** приводится система уравнений, использованная для численного моделирования эволюции пор. Описание эволюции скопления пор [9] проводится в терминах функции распределения пор по размерам  $f(R, t)$  ( $R$  – средний радиус поры,  $t$  – время проведения реакторных испытаний). Нам интересуют эволюция средних параметров пор  $R(t)$ ,  $N(t)$ ,  $V(t)$  (соответственно радиус, концентрация и объем пор). Функция  $f(R, t)$  нормирована так, что ее величина есть число пор в единице объема, имеющих размер от  $R$  до  $R+dR$ . Поскольку зарождение пор на рассматриваемой нами стадии отсутствует, то  $f(R, t)$  удовлетворяет уравнению непрерывности в пространстве размеров:

$$\frac{\partial f}{\partial t} = (R' \frac{\partial}{\partial R} + \frac{\partial}{\partial R} R R') f(R, t), \quad (4.1)$$

где  $R' = \partial R / \partial t$  – скорость роста поры.

Необходимые вычисления для определения  $R(t)$ ,  $N(t)$ ,  $V(t)$  были проведены в [9]. Выведенные там конечные формулы использованы нами для расчета параметров пор в условиях рассматриваемого эксперимента. Расчеты параметров пористой системы на основе этих формул приведены ниже.

Выражение для  $R(t)$  имеет вид, определяемый только параметрами облучения и материальными константами [9]:

$$R(t) = (4t/9)^{1/3} (\Delta\alpha_{iv} + aD^*)^{1/3}, \quad (4.2)$$

где  $\Delta = (KD_v/\beta_r)^{1/2}$ ,  $t = 3 \cdot 10^7$  с - время эксперимента.

$D^* = D_v c_v + D_i c_i$  характеризует самодиффузию вакансий и междоузельных атомов;  $c_x$  – концентрация соответствующего дефекта,  $c_x = \exp(-E_f/kT)$ ;  $E_f = 1,74$  эВ;  $k$  – постоянная Больцмана;  $x = i, v$ ;  $D_i = D_i^0 \exp(-E_m/kT)$ ,  $D_i^0 = 3 \cdot 10^{-5} \text{ м}^2 \text{ с}^{-1}$ ,  $E_m = 0,9$  эВ, для междоузельных атомов;  $T = 1500$  °С – температура;  $D_v = D_v^0 \exp(-E_m/kT)$ ,  $D_v^0 = 10^{-5} \text{ м}^2 \text{ с}^{-1}$ ,  $E_m = 1,1$  эВ, для вакансий.

$K = 10^{-6}$  сна/с – характеризует скорость накопления вакансий и междоузельных атомов под облучением (выражается в смещениях на атом в секунду);  $\beta_r = 4\pi r_{iv}/\omega$ ,  $r_{iv} = 2,15 \cdot 10^{-10}$  - радиус объемной рекомбинации точечных дефектов;  $\beta_r = 10^{21} \text{ м}^{-2}$ ;  $\alpha_{iv} = 1,5 \cdot 10^{-10} \text{ м}$  – разность констант взаимодействия пор с вакансиями и междоузельными атомами.

$\alpha_x = \{(1+v)^2 G \omega / 36\pi(1-v)\Gamma\}^{1/3} b(\Omega_x/\omega)$  – константа взаимодействия поры с дефектом [9], где  $G = 10^{12} \text{ Н/м}^2$  – модуль сдвига;  $\omega = b^3$  – атомный объем;  $b = 0,31 \cdot 10^{-9} \text{ м}$  – межатомное расстояние;  $v = 0,3$  – коэффициент Пуассона;  $\Omega_x$  – объем дефекта,  $x = i, v$  (междоузельный атом или вакансия);  $\Omega_i = 1,2\omega$ ;  $\Omega_v = 0,5\omega$ .

График зависимости среднего радиуса пор от времени эксперимента, описываемый соотношением (4.2), приведен на рисунке 8. Как мы видим, в нашем случае для  $t = 3 \cdot 10^7$  с  $R(t) = 1,2 \cdot 10^{-6} \text{ м}$ , а для времен, закладываемых при проектировании ЯЭДУ мегаваттного класса ( $t = 3 \cdot 10^8$  с), радиус достигает величин порядка  $3 \cdot 10^{-6} \text{ м}$ .

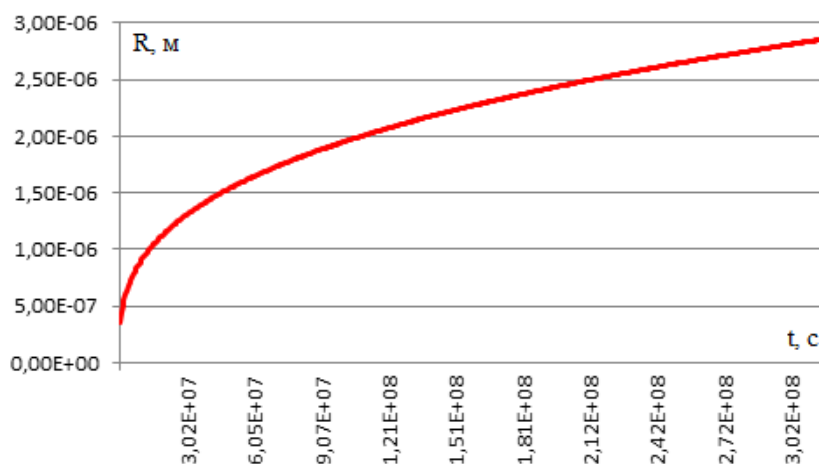


Рис. 8. График зависимости среднего радиуса пор от времени эксперимента.

Расчет концентрации пор  $N(t)$  определяется выражением [9]:

$$N(t) = 27c_d t_0 \ln(t/t_0) / 16\pi\alpha_{iv} t \quad (4.3)$$

где  $c_d(t) = c_d(t_0)(t_0/t)^{1,1}$  – концентрация дислокаций,  $c_d(t_0) = 10^{13} \text{ м}^{-2}$ , а  $t_0 = 10^3 \text{ с}$  можно интерпретировать как длительность стадии зарождения, от которой идет отсчет времени.

Расчет концентрации пор от времени эксперимента дает, в нашем случае, для  $t = 3 \cdot 10^7 \text{ с}$   $N(t) = 1,8 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ . Для времен, закладываемых при проектировании ЯЭДУ мегаваттного класса ( $t = 3 \cdot 10^8 \text{ с}$ ), концентрация пор снижается и достигает величин порядка  $1,2 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-3}$ .

Теперь рассчитаем величину распухания материала оболочки  $\xi$ , используя следующее выражение [9]:

$$\xi = c_d t_0 (KD_v / \beta_r)^{1/2} \ln(t/t_0), \quad (4.4)$$

График зависимости распухания от времени эксперимента, соответствующий соотношению (4.4), приведен на рисунке 9. Как мы видим, в нашем случае для  $t = 3 \cdot 10^7 \text{ с}$   $\xi = 2,4\%$ , а для времен, закладываемых при проектировании ЯЭДУ мегаваттного класса ( $t = 3 \cdot 10^8 \text{ с}$ ), распухание достигает величин порядка  $3,8\%$ .

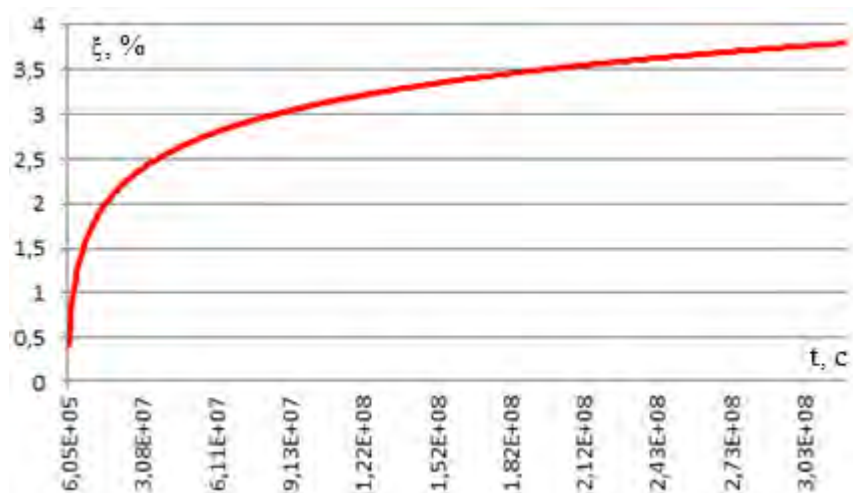


Рисунок 9. График зависимости распухания от времени эксперимента.

**Раздел 4.2** содержит заключение к **Главе 4**. Рассмотрена модель эволюции пор в сплаве МН-3 оболочки ТВЭЛ в условиях работы ядерной энергетической установки Я-82. Обнаруженное нами ранее декорирование границ раздела порами, в настоящей работе объяснено с использованием теории коалесценции. Рассмотрены механизмы эволюции пор, задействованные при параметрах эксперимента. Приведены соотношения для расчета средних параметров пористой системы, а также распухания материала оболочки. Рассчитана зависимость среднего радиуса пор от времени эксперимента.

Оценка среднего размера пор, возникающих в условиях эксперимента, дает значение  $\sim 2$  мкм, что согласуется с полученными экспериментальными данными. Проведено расчетное исследование набухания материала оболочки в процессе облучения. Проведены прогнозные оценки поведения пористой системы и набухания материала оболочки для ядерной энергетической установки мегаваттного класса.

Таким образом, показано, что на основе теории коалесценции можно не только объяснить эффект декорирования порами границ раздела образца оболочки ЭГК при проведении реакторных испытаний, но и сделать оценку средних параметров пористой системы и набухания для ЯЭДУ мегаваттного класса.

В Пятой Главе «Диффузия урана и цезия в оболочку» рассмотрены параметры диффузии урана и цезия в молибден.

В разделе 5.1 приводится расчет термодинамики топлива, из которого подтверждается предположение о том, что проникновение урана в оболочку возможно только в местах контакта топлива и оболочки. Так же подтверждается оценка концентрации урана на внутренней границе оболочки, полученной из анализа концентрационного профиля урана  $\sim 48$  вес. %.

В разделе 5.2 дана оценка коэффициентов диффузии урана и цезия. На рисунках 3 изменение концентрации урана в среднем носит монотонно убывающий (диффузионный) характер.

В этом случае по известной методике [10] можно оценить коэффициент диффузии урана в молибдене в наших условиях. Согласно этому методу коэффициент диффузии записывался как функция концентрации следующим образом:

$$D(C^*) = \frac{10^{-6}}{2t} \left( \frac{dx}{dC} \right)_{C^*} \int_0^{C^*} x dC, \quad (5.2.1)$$

где  $x$  - глубина проникновения в см,  $C^*$  - значение концентрации в вес. % и  $t$  - время диффузии в секундах.

Для конечного расчета с использованием компьютерного кода использовалась следующая формула:

$$D(x^*) = \frac{10^{-6}}{2t} \frac{S(x^*)}{(dC/dx)_{x^*}}, \quad (5.2.2)$$

где  $x^*$  - значение глубины проникновения в см, которое выбирается так, чтобы  $C(x^*)$  равнялась концентрации урана на границе с оболочкой.  $S(x^*)$  -

площадь ограниченная под графиком кривой концентрации от точки Матано до  $x^*$ . Точка Матано выбирается с таким расчетом, чтобы площадь под кривой  $C(x)$  справа от искомой координаты равнялась площади над кривой  $C(x)$  – левее.

Сглаживание концентрационного профиля по наименьшим квадратам дает нам выражение для  $C(x) = 0.47e^{-0.04x}$ . Аналитическое продолжение  $C(x)$  строится для концентраций урана от 0 до 100 вес% (см рис. 21).

Формула (5.2.2) применяется для аналитического продолжения  $C(x)$ . Значение  $x^*$  бралось для координаты, где  $C(x) = 48$  вес.%, так как концентрация урана на границе раздела топливо-оболочка достигает значения  $\sim 48$  вес %, то есть  $x^* = 29$  мкм. Время  $t$  составляет 8300 ч, то есть  $\sim 3 \cdot 10^7$  с. Точка Матано для нашего случая = 40 мкм.  $S(x^*) = 10^{-7}$  см<sup>2</sup>.  $(dC/dx)_{x^*} = 2 \cdot 10^{-2}$ . Рассчитанный коэффициент диффузии составил  $8 \cdot 10^{-13}$  см<sup>2</sup>/с. Результаты расчета сходятся с результатами приведенным в [11, 12].

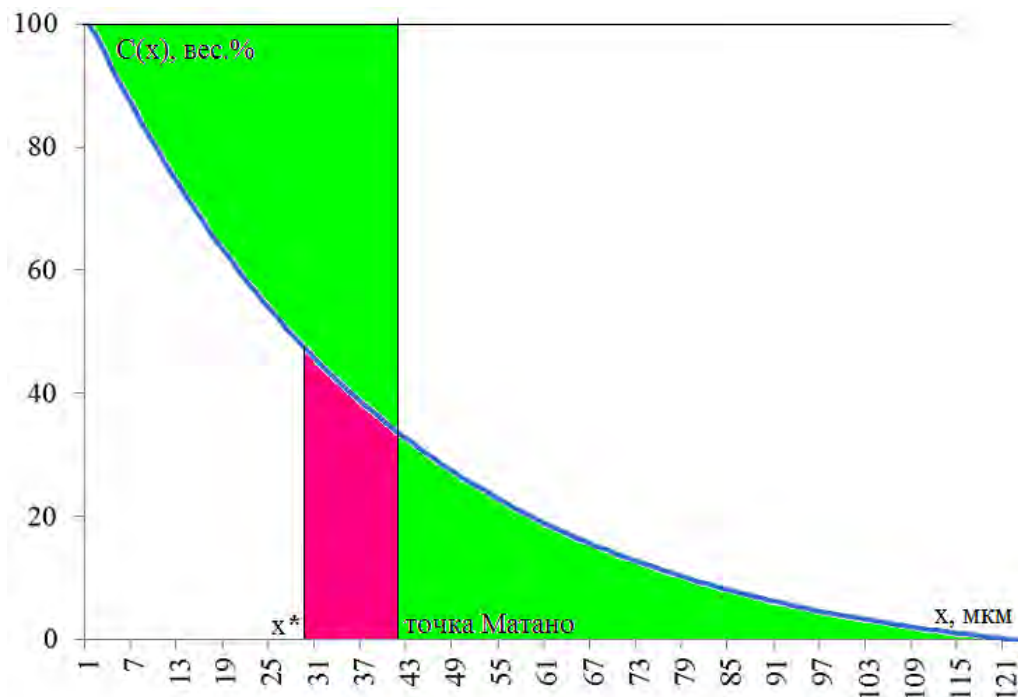


Рисунок 10. Аналитическое продолжение  $C(x)$ .

Помимо этого, можно провести простую оценку коэффициента диффузии из соотношения  $Dt = l^2$ , где  $l$  – глубина проникновения. Из рисунка 3 глубина проникновения определяется, как  $\sim 10^{-2}$  см. Время  $\sim 3 \cdot 10^7$  с. Отсюда получаем  $D = l^2/t \sim 3 \cdot 10^{-12}$  см<sup>2</sup>/с, что так же сходится, как и с нашим расчетом выше, так и с литературными данными для коэффициента диффузии урана в поликристаллическом молибдене при температуре 1500°C.

По аналогии с расчетом коэффициента диффузии урана по монотонно убывающему концентрационному профилю, можно найти и коэффициент

диффузии цезия. На рисунке 7 представлен типичный график изменения К-отношения линии  $Cs_{La}$ . Согласно результатам пересчета экспериментальных данных, концентрация Cs по сечению оболочки изменяется от  $\sim 10$  вес. % на внешнем W кольце оболочки до уровня фона в области границы топлива и оболочки, проникая на глубину  $\sim 10^6$  нм. Дело в том, что Cs является рабочим телом электрогенерирующего канала и в большом количестве присутствует в межэлектродном зазоре, непосредственно контактируя с вольфрамовым покрытием оболочки. По-видимому, в процессе реакторных испытаний имела место диффузия Cs через слои оболочки с коэффициентом диффузии  $\sim 10^{-10}$  см<sup>2</sup>/с, что совпадает с данными работы [8]. Следует отметить, что нами была проведена оценка содержания активного Cs (продукта деления) в оболочке. Однако его содержание оказалось весьма малым и недостаточным для определения методом локального рентгеноспектрального анализа.

**В разделе 5.3** приведена интерпретация немонотонного концентрационного профиля урана (рис. 4). С использованием теории зернограничной диффузии Фишера[13] был оценен коэффициент диффузии урана по границе зерна молибдена  $\sim 10^{-9}$  см<sup>2</sup>/с.

Таким образом, мы получили, что в объем зерна поток урана существенно ослаблен, а с большой скоростью уран диффундирует по границе. Следовательно, существенная немонотонность концентрационного профиля урана(рис.4), наблюдавшаяся в наших экспериментах, может быть объяснена наличием поликристаллической структуры оболочки в приповерхностной области с ее внутренней стороны. При прохождении зерна спектрометр, линейный размер области возбуждения электронного зонда которого составляет  $\sim 1$  мкм, регистрирует провал концентрации урана, а в пограничной области между зернами, концентрация урана возрастает. О наличии поликристаллического слоя свидетельствуют и полученные нами выше численные значения коэффициента диффузии урана в молибден. Эти значения практически совпадают с коэффициентами диффузии урана в поликристалл молибдена, измеренными различными авторами [11, 12].

**Раздел 5.4** содержит заключение к **Главе 5**. В **Главе 5** дана интерпретация результатов экспериментального исследования проникновения урана и цезия в монокристаллическую оболочку ТВЭЛ с карбонитридным топливом, прошедшим ядерные энергетические испытания в составе опытной установки Я-82 в течение 8 300 ч. при температурах  $\sim 1500$  °С. Показано, что коэффициенты диффузии урана в оболочку практически совпадают с коэффициентами диффузии, измеренными ранее для диффузии урана в поликристалл молибдена. Установлено, что проникновение урана в оболочку,



по-видимому, реализуется только при непосредственном контакте оболочки и топлива. Дано объяснение наблюдавшихся экспериментально немонотонных концентрационных профилей урана, основанное на преимущественной диффузии урана по границам зерен. Показано, что существенная немонотонность концентрационного профиля урана, наблюдавшаяся в наших экспериментах, может быть объяснена наличием поликристаллической структуры оболочки в приповерхностной области с ее внутренней стороны. Выполнена оценка коэффициента диффузии урана по границам зерен. Приведена оценка коэффициентов диффузии цезия по полученным экспериментальным данным. Согласно проделанной оценке цезий действительно диффундирует из межэлектродного зазора в вольфрамовое покрытие оболочки.

**В Заключение** приведены основные результаты работы.

Основной задачей данной работы было проведение исследований структуры и распределения ряда компонентов (U, Mo, Nb, Cs, C, N) в образцах оболочки ТВЭЛ из монокристаллического сплава МН-3, прошедшей ядерные энергетические испытания в составе установки Я-82 при температуре 1500°C. Полученные результаты должны были быть проанализированы и при необходимости объяснены с использованием апробированных моделей физических процессов.

В настоящей работе установлено, что концентрационные профили урана в различных проходах (различных местах образца) качественно различны. Всего наблюдали три вида профилей. Во-первых, это отсутствие заметного проникновения урана над уровнем фона. Во-вторых, это монотонно спадающие профили, соответствующие диффузионному проникновению урана и, в-третьих, немонотонные концентрационные профили. Глубина проникновения урана в оболочку составляет  $\sim 100 \mu\text{m}$ . В слое, который можно интерпретировать, как монокристаллический, заметной концентрации урана не обнаружено. Наблюдается корреляция в концентрационных профилях урана и молибдена. Подъему концентрации урана соответствует спад концентрации молибдена и наоборот. При этом концентрация ниобия остается постоянной. Подъемы концентрации урана находятся вблизи границ наблюдавшихся слоев. Это свидетельствует о наличии зерен молибдена в оболочке.

В диссертации дана интерпретация этих результатов и показано, что коэффициенты диффузии урана в оболочку практически совпадают с коэффициентами диффузии, измеренными ранее для диффузии урана в поликристалл молибдена. Установлено, что проникновение урана в оболочку,

по-видимому, реализуется только при непосредственном контакте оболочки и топлива. Дано объяснение наблюдавшихся экспериментально немонотонных концентрационных профилей урана, основанное на преимущественной диффузии урана по границам зерен. Показано, что существенная немонотонность концентрационного профиля урана, наблюдавшаяся в наших экспериментах, может быть объяснена наличием поликристаллической структуры оболочки в приповерхностной области с ее внутренней стороны. Выполнена оценка коэффициента диффузии урана по границам зерен.

Полученный вывод о поликристаллической структуре в оболочке подтверждается и снимками облученного и необлученного, исходного образцов. Обнаруженная на снимках слоистая структура оболочки в образце, прошедшем реакторные испытания, не проявилась на образцах исходной оболочки. Причина возникновения слоистой структуры, по-видимому, связана с воздействием реакторного облучения и переходом монокристалла в поликристаллическое состояние вблизи внутренней поверхности оболочки.

Помимо этого, на снимках на границах слоев наблюдаются скопления пор и других дефектов. Декорирование границ раздела слоев, вероятно, произошло в процессе реакторных испытаний. Интерпретация этого явления дана в **Главе 4**, где рассмотрена модель эволюции пор с использованием теории коалесценции. Рассмотрены механизмы эволюции пор, задействованные при параметрах эксперимента. Приведены соотношения для расчета средних параметров пористой системы, а также распухания материала оболочки. Рассчитана зависимость среднего радиуса пор от времени эксперимента. Оценка среднего размера пор, возникающих в условиях эксперимента, дает значение  $\sim 2$  мкм, что согласуется с полученными экспериментальными данными. Проведено расчетное исследование распухания материала оболочки в процессе облучения. Проведены прогнозные оценки поведения пористой системы и распухания материала оболочки для ядерной энергетической установки мегаваттного класса. Таким образом, показано, что на основе теории коалесценции можно не только объяснить эффект декорирования порами границ раздела образца оболочки ЭГК при проведении реакторных испытаний, но и сделать оценку средних параметров пористой системы и распухания для ЯЭДУ мегаваттного класса.

Ранее исследователями отмечалось принципиальное отсутствие карбидной фазы в молибденовой оболочке. Нами были обнаружены области с повышенным содержанием углерода. Области представляют собой протяженные образования с повышенным содержанием углерода не диффузионного характера.

Кроме этого, было обнаружено проникновение цезия в вольфрамовое покрытие и молибденовую оболочку из межэлектродного зазора. Распределение цезия носит диффузионный характер. Приведена оценка коэффициентов диффузии цезия по полученным экспериментальным данным, которая оказалась близка к известным литературным данным.

При изучении распределения азота наблюдали ступенчатое повышение концентрации азота в области, занимаемой вольфрамом, что, вероятно, свидетельствует о наличии нитридных включений в вольфрамовом покрытии. По-видимому, эти включения имеют технологическое происхождение.

Таким образом все цели поставленные перед началом работы были выполнены. Более того был обнаружен ряд ранее не наблюдавшихся результатов, в том числе немонотонное проникновение урана в оболочку, области с повышенным содержанием углерода и азота, диффузионное проникновение цезия из межэлектродного зазора ЭГК, а также образование поликристаллического слоя на внутренней поверхности оболочки в процессе реакторного облучения.

### **Основные публикации по теме диссертации**

Результаты исследований опубликованы в 5 печатных работах:

3 статьи в рецензируемых журналах, входящих в перечень ВАК, [1-3];

2 статьи в сборниках аннотаций трудов научных конференций [2-3].

1. Васильев И.В., Иванов А.С., Кайнов В.Б., Чурин В.А., Взаимодействие топливной оболочки с карбонитридом урана в электрогенерирующем канале. Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2012, вып. 2, с. 75-82

2. Васильев И.В., Иванов А.С., Эволюция пор в топливной оболочке электрогенерирующего канала. Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2013 (в печати).

3. Васильев И.В., Иванов А.С., Чурин В.А., Диффузия урана и цезия в топливной оболочке электрогенерирующего канала. Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2013 (в печати).

4. И.В. Васильев, А.С. Иванов, В.Б. Кайнов, В.А. Чурин, Высокотемпературное взаимодействие карбонитрида урана с оболочкой из сплава МН-3. – В сборнике аннотаций: 9-ая Курчатовская молодежная научная школа, 22 – 25 ноября 2011, НИЦ «Курчатовский институт», Москва, стр. 17.

5. И.В. Васильев, А.С. Иванов, Эволюция пор в топливной оболочке электрогенерирующего канала. – В сборнике аннотаций: 10-ая Курчатовская молодежная научная школа, 23 – 26 октября 2012 г., НИЦ «Курчатовский институт», Москва, стр. 17.

## **Цитированная литература**

1. Кухаркин Н. Е., Пономарев-Степной Н. Н., Усов В. А. Космическая ядерная энергетика (ядерные реакторы с термоэлектрическим и термоэмиссионным преобразованием – «Ромашка» и «Енисей»). Под ред. акад. РАН Н. Н. Пономарева-Степного. М.: ИздАТ, 2008.
2. Усов В.А., Иванов А.С., Власов Ю.А. и др. Систематизация экспериментальных данных по реакторным испытаниям ТВЭЛ – аналогов с карбонитридным и оксидным топливом и радиационной стойкости материалов отражателей (BeO, Be). Отчет РНЦ КИ 35-43/253 дсп, 2010.
3. Reed S.J.B., Romanenko I.M. Electron Probe Microanalysis. Advanced Mineralogy. v.2. Methods and Instruments, (Ed.Marfunin A.S.) Springer-Verlag Berlin, Heidelberg. 1995. P.240.
4. Pouchou J.I. Pichoir F. Basic expression of "PAP" computation for quantitative EPMA. Proc. of 11<sup>th</sup> Intern. Congr. on X-Ray Optics and Microanalysis, Canada.-London, 1986.-P.249-253.
5. В.А.Чурин, А.С.Деянов, А.С.Иванов, А.А Русинкевич, И.М.Романенко // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2011, вып. 2, с. 75-81.
6. «Расчетно-экспериментальные исследования диффузии в системе «оболочка-КНТ». Отчет НИЦ КИ инв. № 35-43/335, 2011 г.
7. НПО «Луч» Техническое предложение. Пояснительная записка. Шифр: СЧ ОКР «ТЭМ-РУ-ТВЭЛ» Подольск 2011.
8. Королев А. А., Павлинов Л. В.// ФММ 1970, т. 29, выпуск 6, с. 1326-1328.
9. Черемской П. Г., Слезов В. В., Бетехтин В. И., Поры в твердом теле. М.: Энергоатомиздат, 1990.
10. W. Erley, H. Wagner. Volume interdiffusion in the Molybdenum-Tungsten System. Phys. stat. sol. (a) 6. 1971. P. 543.
11. Власов К.П., Гонтарь А.С., Гутник В.С. и др. Разработка метода и экспериментальных устройств для изучения распухания топлива при высоких температурах // Во-просы атомной науки и техники. Серия «Атомное материаловедение», вып.3(16), 1984, с.19-21.
12. Olander D.R. Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements. U.S. Department of Energy, 1976.
13. Каур И., Густ В. Диффузия по границам зерен и фаз. Пер. с англ. Б. Б. Страумала. Под ред. Л. С. Швиндлермана. – М.: Машиностроение, 1991.