

рительной двухэтапной термической обработки порошков при 345...355 °С в течение 16 ч, а затем при 800...830 °С — 5 ч. заметно повышается. При

термообработке таблеток в диапазоне 800...1300 °С плотность возрастает в 1,2...1,45 раза, а при дальнейшем увеличении температуры — снижается.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Белоус В.Н., Носков А.А., Степанов И.А. Водно-химический режим на АЭС с реакторами ВВР при дозировании цинка // Атомная техника за рубежом. — 1990. — № 4. — С. 6–9.
2. Pat. № 3022133 US. Methods of Inhibiting the Pitting of Iron and Steel / G. Hatch. 1962.
3. Уманский А.М. Прессование порошковых материалов. — М.: Металлургия, 1981. — 296 с.
4. Казенас Е.К., Цветков Ю.В. Испарение оксидов. — М.: Наука, 1997 — 543 с.
5. Казенас Е.К., Цветков Ю.В. Термодинамика испарения оксидов. — М.: ЛКИ, 2008 — 480 с.

Поступила 05.02.2009 г.

УДК 621.039.586:536.42

МОДЕЛИРОВАНИЕ ДИНАМИКИ ТЕМПЕРАТУРНЫХ ПОЛЕЙ И ОБРАЗОВАНИЯ КАРБИДОВ В ЭКСПЕРИМЕНТАХ С КОРИУМОМ

Ю.С. Васильев*, В.И. Супрунов*, Р.А. Иркимбеков*, И.В. Шаманин, В.А. Лызко

Томский политехнический университет

*Институт атомной энергии Национального ядерного центра, г. Курчатов, Республика Казахстан

E-mail: shaman@phtd.tpu.ru

Приведено описание результатов, полученных в приборных и численных экспериментах по определению динамики теплового состояния и образования карбидов при использовании физической модели процесса плавления тепловыделяющего элемента в условиях тяжелой запроектной аварии ядерного реактора. Определены константы уравнений кинетики взаимодействия графита с цирконием и диоксидом урана при температурах до 3200 К. Разработанная методика позволяет моделировать динамику температурных полей, плавления материалов и образования карбидов при индукционном нагреве композиции материалов активной зоны.

Ключевые слова:

Ядерный реактор, активная зона, тяжелая авария, кориум, физическое моделирование, индукционный нагрев, уран, цирконий, карбиды.

Состояние исследований

При проведении исследований в обоснование безопасности перспективных ядерных реакторов, в частности, при исследовании последствий тяжелых аварий используют модели расплава материалов активной зоны реактора (кориума). В Институте атомной энергии Национального ядерного центра Республики Казахстан (ИАЭ НЯЦ РК) [1] изучаются свойства моделей кориума, механизмы его взаимодействия с теплоносителем, реакторной сталью и бетоном. Проводятся эксперименты в обоснование работоспособности выбранных режимов охлаждения конструкций защитных барьеров при плавлении активной зоны. При подготовке экспериментов и анализе экспериментальных результатов выполняется расчетная поддержка экспериментов [2].

Описание экспериментов

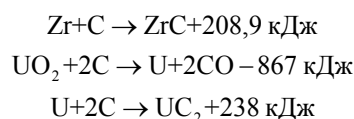
Для получения кориума на экспериментальных установках ИАЭ НЯЦ РК используют электроплавильные печи, в которых компоненты шихты, образующей модель кориума, помещают в графито-

вый тигель, затем плавят посредством индукционного нагрева.

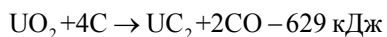
При температуре 1850 °С происходит плавление циркония [3], который в жидком состоянии образует эвтектику с диоксидом урана [4].

Реакция образования карбида урана проходит в два этапа. На первом этапе происходит восстановление урана и образование моноокси углерода, а на втором — происходит образование карбида урана.

Если перегреть тигель, то при температуре выше 2400...2450 °С протекают химические реакции взаимодействия циркония и диоксида урана с графитом:



С учетом того, что продукт первого этапа является реагентом для второй реакции, принято, что данную цепочку реакций между диоксидом урана и графитом можно представить единой реакцией, в которой диоксид урана преобразуется в карбид урана:



Известно, что химические реакции между материалами загрузки тигля (циркония и диоксида урана) и графитом протекают с выделением газа в объем индукционной печи и уменьшением толщины боковой стенки и дна тигля. В экспериментах наблюдалось возрастание электрического тока одновременно с падением напряжения. Сделано предположение, что это связано с уменьшением толщины боковой стенки тигля вследствие высокотемпературного химического взаимодействия графита с цирконием и диоксидом урана. Проведена серия расчетов, подтвердившая это предположение, и определена зависимость уменьшения электрического сопротивления индуктора от толщины слоя графита, «унесенного» в кориум (рис. 1).

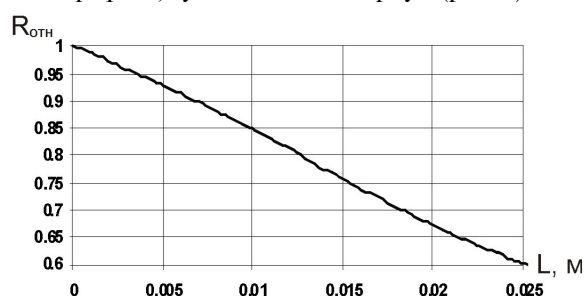


Рис. 1. Зависимость относительного сопротивления ($R_{отн}$) установки от толщины слоя графита (L , м), «унесенного» с поверхности тигля

Для оценки скорости протекания химической реакции между диоксидом урана и графитом тигля, происходящей с выделением газообразного СО, использованы экспериментальные данные по изменению давления в полости плавильной печи, происходящего вследствие выделения газообразного продукта реакции, а также разогрева объема внутри установки.

Разработана методика, позволяющая оценить скорость реакций взаимодействия циркония и диоксида урана с графитом. Для расчета скорости выделения газа используются данные по изменению:

- времени открытия и закрытия клапана сброса давления;
- давления в полостях установки в ходе эксперимента;
- средней температуры газа в тигле;
- средней температуры газа в теплоизоляции;
- показаний датчиков, регистрирующих температуру газа в полости устройства приема расплава.

Для определения скорости уменьшения толщины стенки тигля используются данные по изменению электрического напряжения и тока в течение эксперимента.

В ходе экспериментов разработана модель процесса индукционного нагрева с учетом:

- изменения геометрии экспериментальной кассеты при плавлении материалов;

- растворения цирконием диоксида урана;
- взаимодействия графита с цирконием;
- взаимодействия графита с диоксидом урана.

Для проведения расчетов разработана параметрическая модель индукционного нагрева тигля, использующая экспериментальные данные, полученные в ранее проведенных экспериментах. Модель включает в себя «электромагнитную» и «теплофизическую» задачи, решаемые последовательно для каждого момента времени.

В «электромагнитной» задаче моделируются распределение магнитного поля в системе, включающей внешний электрический контур, медные крышки установки и индуктора, магнитопровод, теплоизоляцию вокруг тигля, внутрь которого помещается экспериментальная топливная кассета с цирконием и диоксидом урана.

«Теплофизическая» задача описывает параметры только тех частей установки, температура которых может влиять на значение температуры внутри тигля. Это медные крышки установки, теплоизоляция, сам тигель и экспериментальная кассета в нем.

В «теплофизической» задаче динамика температурного поля определяется с учетом:

- перемещения материалов при плавлении циркония и диоксида урана,
- образования эвтектики между диоксидом урана и цирконием,
- образования карбидов циркония и урана,
- уменьшения толщины стенок тигля,
- затрат энергии на образование эвтектики и протекание химических реакций.

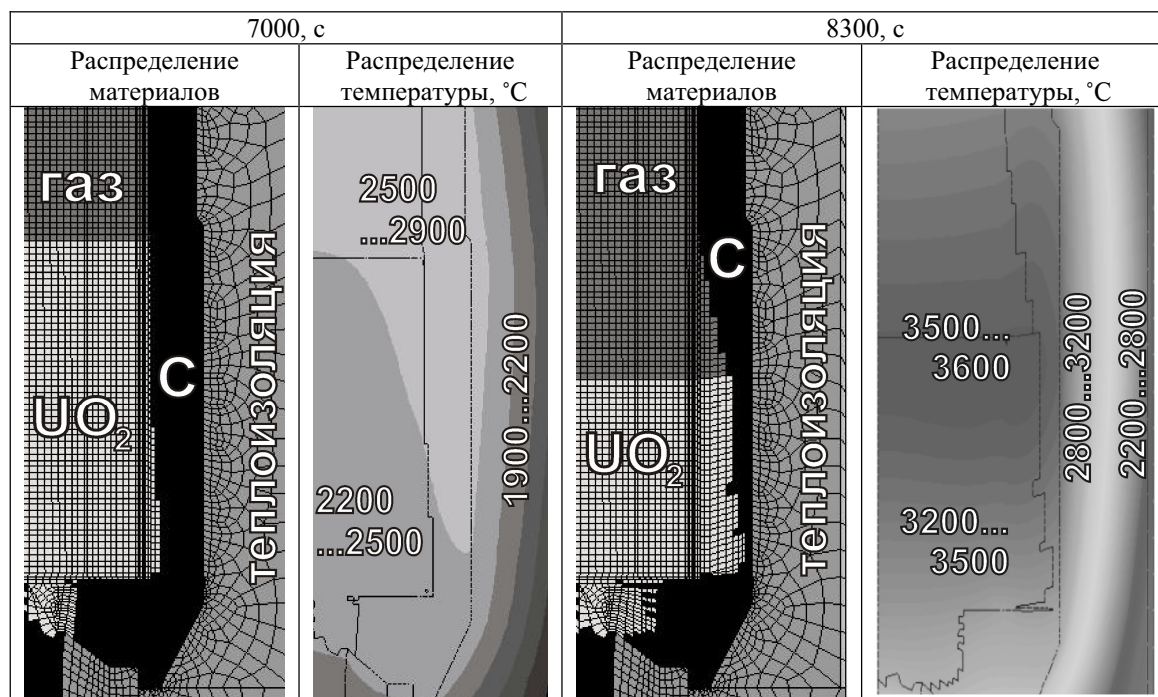
Результаты экспериментов

В результате численных экспериментов получены данные по площади поверхности контакта расплава с тиглем, температуре этого контакта, а также динамики температурного поля в материалах (таблица).

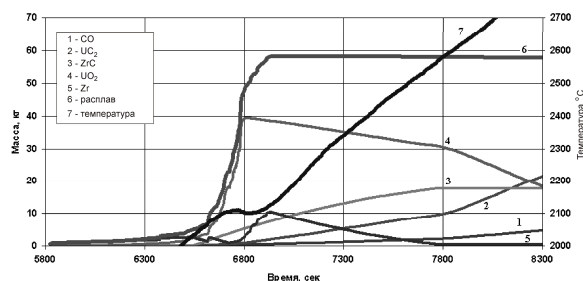
В численных экспериментах использована двумерная аксиально-симметричная модель. На рисунках, представленных в таблице, ось симметрии модели вертикальна и проходит по их левой границе. Наиболее темным цветом изображен тигель, изолированный от индуктора теплоизоляцией. В верхней части тигля над уровнем расплава кориума находится газовая полость.

В начале процесса плавления циркония, когда температура в тигле и поверхность контакта между ним и таблетками диоксида урана малы, скорость реакции незначительна.

При полном растворении слоя диоксида урана происходит «оседание» кассеты, что приводит к вытеснению образовавшейся эвтектики циркония и диоксида урана. Увеличение поверхности контакта и температуры раствора приводят к резкому

Таблица. Распределение материалов и температуры внутри тигля

росту скорости образования эвтектики (рис. 2). Одновременно с этим начинают протекать реакции взаимодействия графита с цирконием и диоксидом урана, что приводит к уменьшению концентрации циркония в расплаве и толщины тигля в донной части еще в процессе образования эвтектики.

**Рис. 2.** Изменение массы веществ в расплаве (1–6) и температуры расплава (7) во времени

В результате расчета массы расплава и его компонентов определены данные по концентрации веществ в расплаве, которые были использованы для определения констант в уравнениях химической кинетики для реакций взаимодействия материалов кориума с графитом тигля. С учетом того, что зависимость скорости химической реакции от температуры для большинства реакций является экспоненциальной [5], скорость образования карбида циркония определялась из соотношения:

$$\frac{v/S}{C_{Zr} \cdot C_C} = C_1 \cdot e^{C_2 T},$$

$$C_{ZrC}$$

где v – удельная скорость химической реакции; S – площадь контакта расплава с графитом тигля; T –

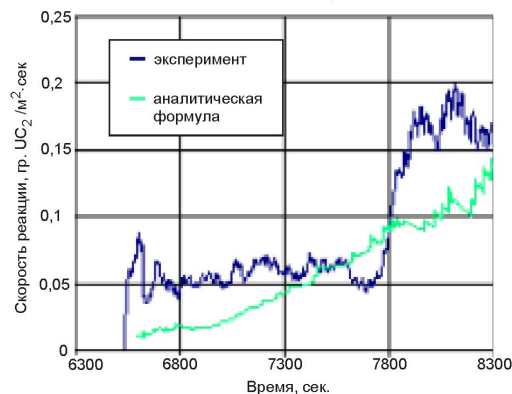
температура; C_1, C_2 – константы, описывающие кинетику процесса; C_{Zr}, C_C, C_{ZrC} – доли молекул (атомов) компонентов в расплаве, вычисляемые по формуле:

$$C_i = N_i / N_{\Sigma},$$

где N_i – количество молекул (атомов) i -ого вещества в расплаве; N_{Σ} – общее количество молекул в расплаве.

Параметры C_1 и C_2 определялись эмпирически при сравнении экспериментальных и расчетных данных.

Скорость взаимодействия графита с диоксидом урана в течение эксперимента возрастает. Проведено сравнение значений скорости реакции в эксперименте со значениями скорости, определенными при подстановке значений температуры, поверхности контакта, и концентраций веществ, получаемых в численном эксперименте, в кинетическое соотношение для процесса. Константы C_1 и C_2 определялись эмпирически (рис. 3).

**Рис. 3.** Зависимость скорости реакции образования карбида урана в эксперименте и ее «восстановление» по кинетическому соотношению

Реакция взаимодействия циркония с графитом инициируется при достижении температуры 2400...2450 °С и, поскольку является экзотермической, протекает бурно. В течение эксперимента скорость реакции падает вследствие снижения концентрации циркония в растворе (рис. 4).

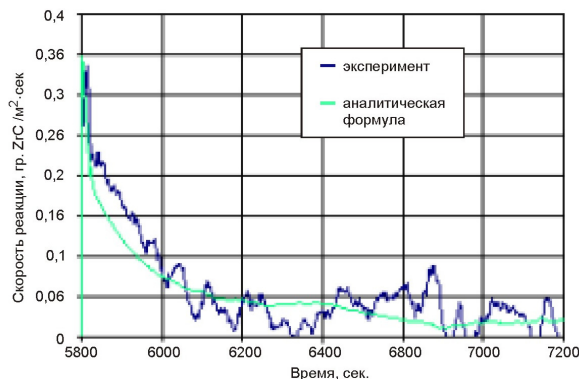


Рис. 4. Зависимость скорости реакции образования карбида циркония в эксперименте и ее «восстановление» по кинетическому соотношению

Значения констант для реакции взаимодействия графита с диоксидом урана составили: $C_1=9,00 \cdot 10^{-5}$,

$C_2=3,69 \cdot 10^{-3}$; среднеквадратичное отклонение значений скорости реакции не превышает 33 % при 2400 °С и 42 % при 3600 °С. Значения констант для реакции взаимодействия графита с цирконием: $C_1=3,62$, $C_2=1,40 \cdot 10^{-5}$; среднеквадратичное отклонение значений скорости реакции не превышает 38 % в интервале температур от 2400 до 3600 °С.

Заключение

Разработанный комплекс методик и параметрических двухмерных моделей позволяет моделировать динамику температурного поля при индукционном нагреве композиции материалов активной зоны в графитовом тигле с учетом изменения формы материалов при оплавлении, а также тепловых процессов при протекании химических реакций.

Определены значения констант скоростей химических реакций взаимодействия циркония и диоксида урана с графитом при температурах до 3600 °С. За счет предварительной подготовки регламента изменения мощности в индукционной печи исключается образование карбидов в графитовом тигле.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Vassiliev Yu.S., Vassiliev V.V. Design studies of interaction processes between melt reactor core material composition, coolant and construction materials // Nuclear science and its application: Proc. of the II Eurasian Conf. — Almaty, 2002 — Алматы: Атамурта, 2002. — С. 342.
2. Васильев Ю.С., Вурим А.Д., Гайдайчук В.А. и др. Исследования по проблемам безопасности ядерных энергетических установок на исследовательском реакторе ИГР: Результаты средне-масштабного внутриреакторного эксперимента, проведенного в рамках проекта EAGLE // Вестник НЯЦ РК. — 2006. — Вып. 4 (28). — С. 48–59.
3. Чиркин В.С. Теплофизические свойства веществ. — М.: Атомиздат, 1968. — 484 с.
4. SCDAP/RELAP5/MOD3.1 Code Manual. Volume IV: MATPRO-A Library of Materials Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis, INEL, Idaho Falls, Idaho, 1993.
5. Эмануэль Н.М., Кнорре Д.Г. Курс химической кинетики. — М.: Высшая школа, 1984. — 463 с.

Поступила 29.12.2008 г.