

ГРАФИТ КАК КОНСТРУКЦИОННЫЙ МАТЕРИАЛ ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ СИСТЕМ IV ПОКОЛЕНИЯ

*А.И. Комир, Н.П. Одейчук, А.А. Николаенко, В.И. Ткаченко,
В.А. Деревянко, О.В. Кривченко, А.Г. Шепелев*

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,
Харьков, Украина*

E-mail: komir@kipt.kharkov.ua

Рассмотрена динамика, тип, страна и язык публикаций по тематикам: окисления, пористой структуры, газовой диффузии, газопроницаемости, массопереноса, применимым к ядерному графиту. Использовались результаты исследования баз данных INIS и MSCI. Выделены основные закономерности и особенности в динамике исследуемых публикаций.

ВВЕДЕНИЕ

Графит как конструкционный и функциональный материал используют начиная с первых экспериментальных ядерных реакторов, таких как «Ф-1» и «Чикагская поленница». В дальнейшем он широко применялся в высокотемпературных реакторах: AVR (Германия), FCV (США), улучшенном реакторе с газовым охлаждением AGR (Англия) и в уран-графитовых реакторах двойного назначения (СССР) – канальных реакторах большой мощности (РБМК) [1]. На данный момент графит является конструкционным и функциональным материалом в ядерных энергетических системах IV поколения: в высокотемпературных газоохлаждаемых (ВТГР) и жидко-солевых реакторах.

СВОЙСТВА ЯДЕРНОГО ГРАФИТА

Ядерный графит обладает рядом уникальных востребованных свойств, присущих конструкционным материалам ядерной энергетики. Данный материал в диапазоне температур своего использования увеличивает прочность с возрастанием температуры, обладает коррозионной и эрозионной стойкостью при облучении [2].

ОКИСЛЕНИЕ ГРАФИТА

Увеличение количества публикаций отражает рост актуальности, связанный с произошедшими событиями в мире. Так, на рис. 1 изображен график количества публикаций, на котором можно наблюдать рост активности исследований после таких событий, как Чернобыль в 1986 г., и принятое в этом же году в государственную программу перспективных разработок Китая высокотемпературное направление в реакторостроении. В некоторой степени, актуальность данной тематики также обусловлена введением в эксплуатацию нового ВТГР в Китае, строительство которого планировалось на 2008 г., но было отложено до 2012 г. [3].

Из графика по количеству публикаций можно сделать заключение, что скорость публикаций не является линейной. Это, на наш взгляд, отражает незавершенный процесс описания механизмов окисления ядерного графита, что в некоторой степени связано с постепенным переходом реакторов типа

ВТГР на более высокую температуру активной зоны и теплоносителя (рис. 2).

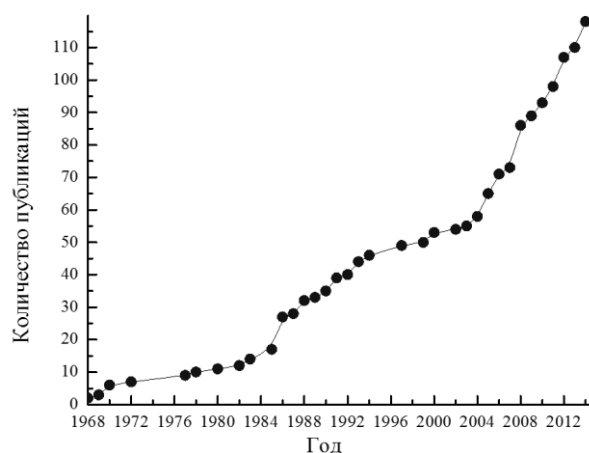


Рис. 1. Кумулятивный график количества публикаций по тематике «Окисление реакторного графита» за 1968–2015 гг.

Данный переход является не только количественным, но и качественным, поскольку в распространенной в данный момент теории окисления [4] повышение температуры смещает диапазон в стадию С – режим окисления пограничного слоя (рис. 3).

В результате основная часть компонентов при окислении будет находиться в отдельной комбинированной стадии, описанной в работе [6], совмещающей в себе ограничения скорости окисления как по диффузии внутри порового пространства, так и по газовой диффузии окислителя к эродирующей поверхности.

Существенное увеличение числа публикаций [7] в период, не охваченный данным исследованием, было отмечено после событий 1957 года в Уиндскейле (Англия). Согласно теории, предложенной Юджином Вигнером в 1946 г. [8], это событие было обусловлено высвобождением энергии, запасенной в графите при нейтронном облучении, что привело к событию, классифицированному по шкале INES (International Nuclear Event Scale) как 5 уровень.

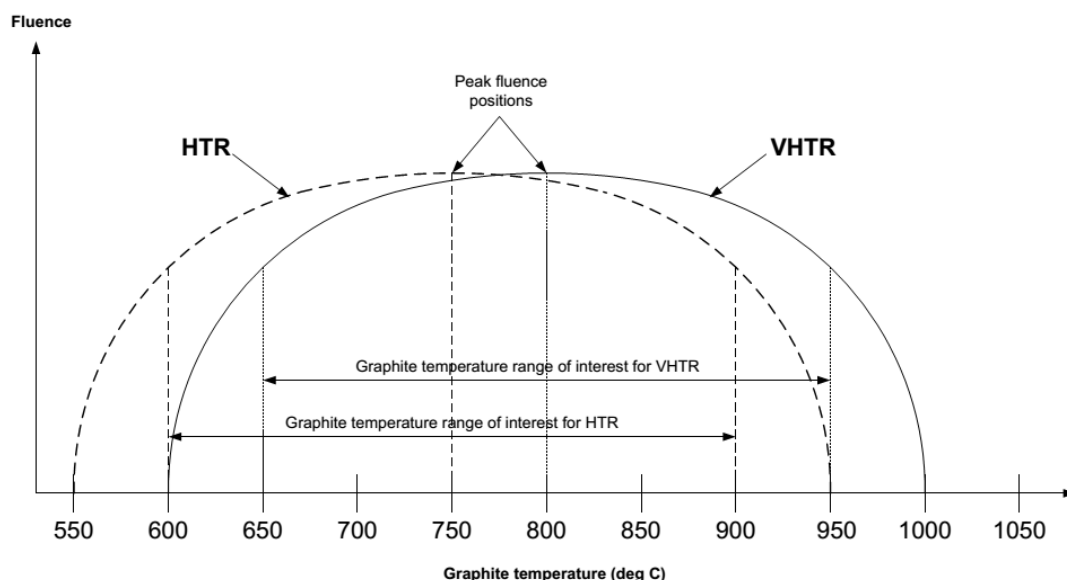


Рис. 2. Температурный диапазон работы ВТГР HTR (пунктирная кривая) и ВТГР VHTR (сплошная кривая) IV поколения [4]

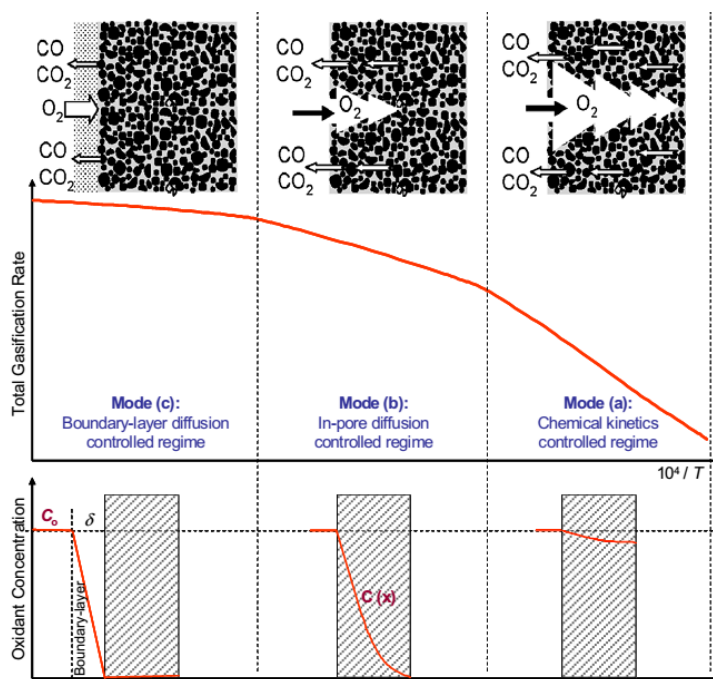


Рис. 3. Режим окисления ядерного графита в зависимости от температуры [5]

Как показано на рис. 4, основные публикации выполнены в странах, активно использующих и исследующих возможности атомной энергетики: США и Японии. Эти страны также входят в тройку лидеров по росту числа публикаций исследуемой тематики.

Тенденция возрастающего числа публикаций и наличие таких крупных исследовательских проектов в данной области, как Project No. 09-830 [9], говорят об актуальности данной тематики, связанной с необходимостью обоснования высокой безопасности при гипотетических аварийных ситуациях на ядерных энергетических системах IV поколения [10].

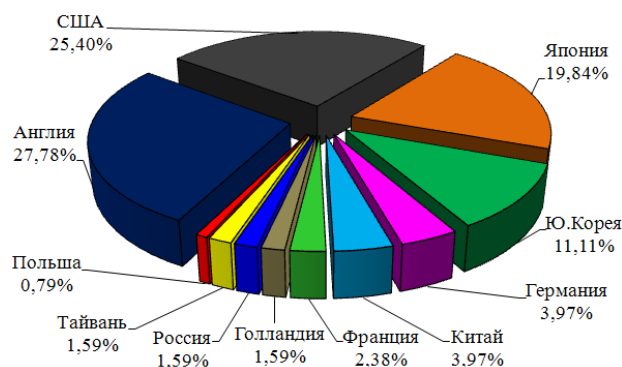


Рис. 4. Распределение публикаций по тематике «Окисление реакторного графита» по странам за 1968–2015 гг.

ПОРИСТАЯ СТРУКТУРА

Графит является материалом с развитой пористой структурой, которую нужно учитывать при моделировании и прогнозировании свойств материала. Окисление влияет неоднородно на пористую структуру графита, образуя нелинейные профили выгорания внутреннего пространства. Данный тип исследований был проведен в работе [11], где получены полуэмпирические формулы для расчетов данных профилей окисления. В работе [12] приведены расчетные профили выгорания на основании усредненного коэффициента диффузии и скорости окисления графита. Однако из-за отсутствия системного исследования данной тематики можно констатировать и отсутствие полной картины описания процессов окисления.

Тематика пористой структуры была рассмотрена в контексте воздействия ионизирующего излучения на пористую структуру. В исследуемом случае объектом были микро- и нанопоры (морозовские трещины), служащие стоками для мигрирующих атомов под действием излучения, которые скапливаются

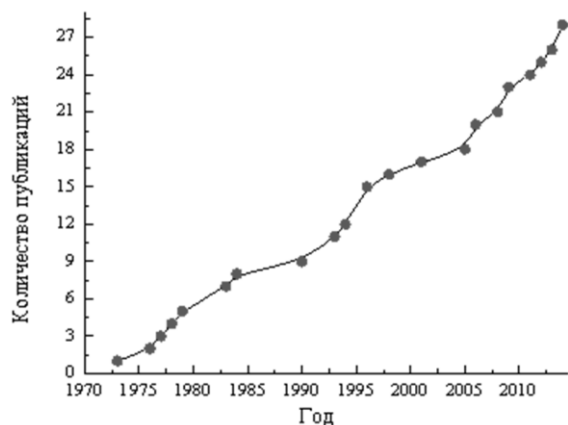


Рис. 5. Кумулятивный график количества публикаций по тематике «Пористая структура реакторного графита» за 1973–2015 гг.

ГАЗОВАЯ ДИФФУЗИЯ

Одним из наименее исследованных свойств реакторного графита является газовая диффузия сквозь внутреннюю его пористость. Эта тематика — один из аспектов более общих тем, например, окисление и пористая структура графитов. Она позволяет уточнять скорость окисления графита при режиме окисления, ограниченном диффузией окислителя внутри пор.

По этой тематике распределение публикаций по годам показано на рис. 7. Следует отметить, что в данной тематике существенную часть, по сравнению с другими тематиками, занимают публикации на русском языке, которые находятся на втором месте после публикаций на английском языке (рис. 8).

ГАЗОПРОНИЦАЕМОСТЬ

Тематику окисления и газовой диффузии реакторных графитов характеризует также такой термин,

ся в порах, и, таким образом, уменьшают пористость на микро- и наноразмере [13].

Методики исследования пористой структуры в последнее время существенно улучшились с появлением высокоразрешающих рентгеновских микро- и нанотомографов. Эти методики применялись исследователями в работе [14] для прогнозирования напряжений, обусловленных наличием пористости в материале. На данный момент уже существуют более высокоразрешающие методики, позволяющие исследовать пористую структуру на уровне менее одного микрометра. Они охватывают практически весь влияющий на формирование механических напряжений диапазон пористости.

Динамика публикаций по теме: «Пористая структура реакторного графита» приведена на рис. 5. В основном это публикации англоязычные — 92%.

К особенностям данной тематики исследований можно отнести существенно большее количество отчетов, по сравнению с другими типами публикаций, что указывает на производственную и технологическую направленность исследований (рис. 6).

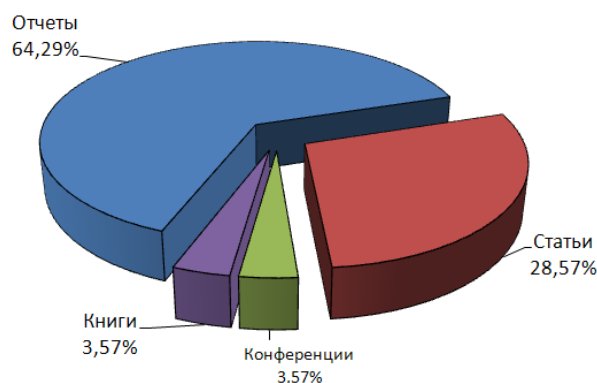


Рис. 6. Распределение публикаций по тематике «Пористая структура реакторного графита» и типам за 1973–2015 гг.

как газопроницаемость (распределение публикаций по годам и типам показано на рис. 9 и 10), который фигурировал в основном в отчетах (см. рис. 10) и рассматривался, судя по результатам исследования автоматизированных баз данных, в период с 1970 по 1987 гг. Отличительным свойством термина газопроницаемость является использование его в контексте разности давлений, а не разности концентраций, как в случае с газовой диффузией.

Одной из двух основных целей исследования газопроницаемости является описание процессов перемещения различных изотопов, например стронция-90, в графите [15]. Такие исследования являются достаточно актуальными в связи с вопросом вывода из эксплуатации графитовых компонентов ядерных реакторов [16]. Второй, основной целью исследования является влияние газопроницаемости на скорость окисления [17, 18].

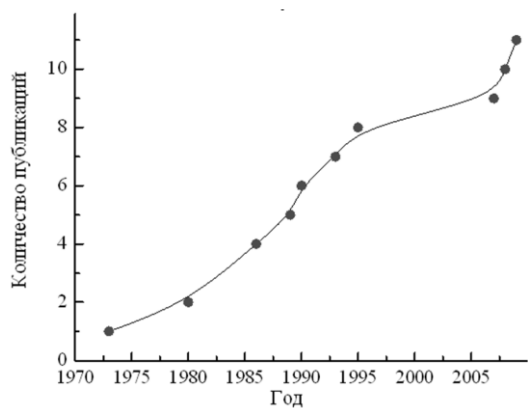


Рис. 7. Кумулятивный график количества публикаций по тематике «Газовая диффузия» за 1973–2009 гг.

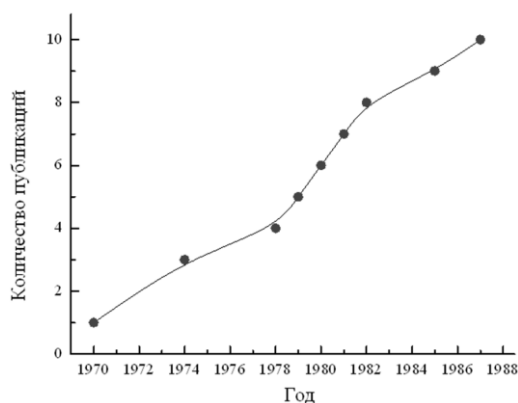


Рис. 9. Кумулятивный график количества публикаций по тематике «Газопроницаемость» за 1970–1987 гг.

МАССОПЕРЕНОС

В последнее время, как следует из рис. 11, термин массоперенос стал использоваться для описания процессов окисления. В основном, данный термин используется в рамках описания процессов, протекающих в ВТГР при окислении ядерного графита, и прогнозирования процессов выгорания приповерхностного слоя при различных температурах [19, 19].

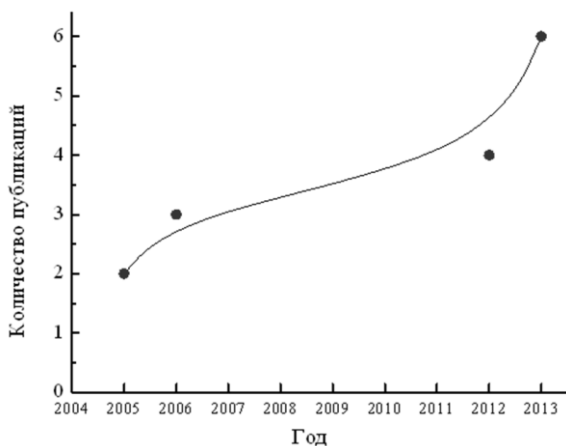


Рис. 11. Кумулятивный график количества публикаций по тематике «Массоперенос» за 2005–2013 гг.

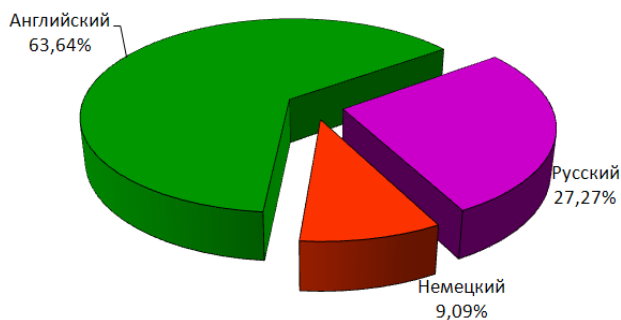


Рис. 8. Распределение публикаций по тематике «Газовая диффузия» и языкам за 1973–2009 гг.

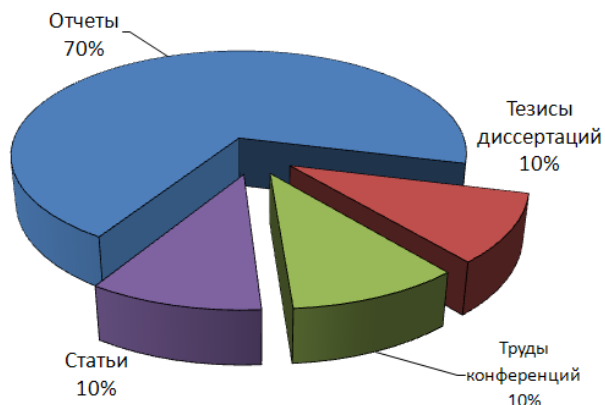


Рис. 10. Распределение публикаций по тематике «Газопроницаемость» и типам за 1970–1987 гг.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Данная работа является обзорным исследованием мировых научных публикаций с 1968 по 2015 гг. по вопросу окисления реакторного графита и смежных тематик. В основе исследования использовался результат поиска в автоматизированных Базах данных «International Nuclear Information System» (INIS) и «Materials Science Citation Index» (MSCI).

Проведенный обзор литературных источников, связанных с окислением ядерного графита, позволяет составить общее представление об исследованности, актуальности и мотивации рассмотренных тем.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Н.А. Доллежал, И.Я. Емельянов. *Канальный ядерный энергетический реактор*. М.: «Атомиздат», 1980, 208 с.
2. Е.И. Жмуриков, И.А. Бубненко, В.В. Дрёмов, С.И. Самарин, А.С. Покровский, Д.В. Харьков. *Графит в науке и ядерной технике*. Новосибирск, 2013, 193 с.
3. Fu Li. HTR Progress in China // *Technical Meeting on the Safety of High Temperature Gas Cooled Reactors in the Light of the Fukushima Daiichi Accident*. Vienna, Austria. April 8–11 2014, 34 p.
4. Davies M. Qualification of selected graphites for a future HTR // *Technical Meeting on High-*

Temperature Qualification of High Temperature Gas-Cooled Reactor: Materials IAEA, 10–13 June 2014, Vienna, 2014, 30 p.

5. Mohamed S. El-Genk, Jean-Michel P. Tournier. Sherwood number correlation for nuclear graphite gasification at high temperature // *Progress in Nuclear Energy*. 2013, v. 62, p. 26-36.

6. Mohamed S. El-Genk. Development and validation of a model for the chemical kinetics of graphite oxidation / Mohamed S. El-Genk, Jean-Michel P. Tournier // *Journal of Nuclear Materials*, 2011, v. 411, issue 1-3, p. 193-207.

7. W.L. Kosiba, G.J. Dienes, D.H. Gurinsky. Some effects produced in graphite by neutron irradiation in the BNL reactor // *2nd Biennial Conference*. 1955, p. 143-148.

8. E.P. Wigner. Theoretical Physics in the Metallurgical Laboratory of Chicago // *Journal of Applied Physics*, 1946, v. 17, issue 11, p. 857-863.

9. M. El-Genk, J.-M. Tournier, B. Travis. *Graphite Oxidation Simulation in HTR Accident Conditions*: Technical Report. University of New Mexico, 2012, 153 p.

10. J.J. Lee, K.G. Tushar, S.K. Loyalka. Oxidation rate of graphitic matrix material in the kinetic regime for VHTR air ingress accident scenarios // *Journal of Nuclear Materials*. 2014, v. 451, p. 48-54.

11. R.P. Wichner, T.D. Burchell, C.I. Contescu. Penetration depth and transient oxidation of graphite by oxygen and water vapor // *Journal of Nuclear Materials*. 2009, v. 393, issue 3, p. 518-521.

12. Robert P. Wichner. *Note on Graphite Oxidation by Oxygen and Moisture*: Report ORNL/TM-2008/230. Oak Ridge National Laboratory, 2008, 51 p.

13. Guiqiu Zheng, Peng Xu, Kumar Sridharan, Todd Allen. Characterization of structural defects in nuclear graphite IG-110 and NBG-18 // *Journal of Nuclear Materials*. 2014, v. 446, p.193-199.

14. C. Berre, S.L. Fok, B.J. Marsden, L. Babout, A. Hodgkins, T.J. Marrow, P.M. Mummery. Numerical modelling of the effects of porosity changes on the mechanical properties of nuclear graphite // *Journal of Nuclear Materials*. 2006, v. 352, issue 1-3, p. 1-5.

15. M.J. Haire. *Evaluation of strontium-90 radial concentration profiles in Peach Bottom HTGR Core 2 fuel elements*. HTGR base technology program, HTGR chemistry studies. Oak Ridge National Lab. – TN, USA, 1979, 120 p.

16. C. Wood. *Graphite Decommissioning*: Electric Power Research Institute. Final Report. 2006, 156 p.

17. F.B. Growcock, J.J. Barry, C.C. Finfrock, E. Rivera, J.H. Heiser. *Graphite oxidation in HTGR atmosphere*. Brookhaven National Lab. Upton, NY, USA, 1982, p. 479-499.

18. A.S. Chernikov, L.I. Mikhailichenko, V.A. Reshetnikov, A.S. Cherkasov. HTGR spherical fuel elements and their operational characteristics // *JAIF-GKAE seminar on fuel elements and fuel composition of HTGR*. 1987, p. 21-32.

19. Iqbal Kaleem. *Mathematical modeling of oxidation behaviour and burn-off in nuclear graphite of high temperature gas-cooled reactors*. Korea Advanced Institute of Science and Technology, 2005, 39 p.

20. Mohamed El-Genk, Jean-Michel Tournier. Diffusion Velocity Correlation for Nuclear Graphite Gasification at High Temperature and Low Reynolds Numbers // *International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP-2012)*. 2012, v. 44, issue 25, 7 p.

Статья поступила в редакцию 15.10.2015 г.

ГРАФІТ ЯК КОНСТРУКЦІЙНИЙ МАТЕРІАЛ ЯДЕРНИХ ЕНЕРГЕТИЧНИХ СИСТЕМ ІV ПОКОЛІННЯ

*А.І. Комір, М.П. Одейчук, А.А. Ніколаєнко, В.І. Ткаченко, В.А. Дерев'яно,
О.В. Кривченко, А.Г. Шепелєв*

Розглянуто динаміка, тип, країна і мова публікацій за тематиками: окислення, пористої структури, газової дифузії, газопроникності, масопереноса, які стосовні до ядерного графіту. Використовувалися результати дослідження баз даних INIC і MSCI. Виділено основні закономірності та особливості в динаміці досліджуваних публікацій.

GRAPHITE AS A STRUCTURAL MATERIAL OF GENERATION IV NUCLEAR ENERGY SYSTEMS

*A.I. Komir, N.P. Odeychuk, A.A. Nikolaenko, V.I. Tkachenko, V.A. Derevyanko,
O.V. Krivchenko, A.G. Shepelev*

In the paper researched the dynamics, type, country and language of the publication on subjects: oxidation, the pore structure, gaseous diffusion, permeability, mass transfer, applicable to nuclear graphite. We used the results of the study database INIC and MSCI. The basic regularities and peculiarities in the dynamics of the studied publications have been interpreted.