

ТРУДЫ РФЯЦ-ВНИИЭФ

24

Часть II

2019

**ФГУП
«РОССИЙСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ ЯДЕРНЫЙ ЦЕНТР -
ВСЕРОССИЙСКИЙ НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ ФИЗИКИ»**

ТРУДЫ РФЯЦ-ВНИИЭФ

Научно-исследовательское издание

ВЫПУСК 24

В двух частях

Саров

2019

УДК 539.1(06)
ББК 22.38
Т78

Т78 **Труды РФЯЦ-ВНИИЭФ.** Научно-исследовательское издание. Вып. 24:
в 2 ч. – Саров: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2019.
ISBN 978-5-9515-0483-8
Часть 2. – 219 с.
ISBN 978-5-9515-0485-2 (ч. 2)

В сборнике «Труды РФЯЦ-ВНИИЭФ» опубликованы результаты научных исследований, а также методических и проектно-конструкторских разработок в области прикладных задач теоретической физики, математического моделирования физических процессов, ядерной физики, физики ядерных реакторов, исследований по термоядерному синтезу, электрофизики, физики ускорителей, приборов и техники эксперимента, физики лазеров, гидродинамики, реологии, материаловедения, средств защиты от несанкционированных действий, электроники, радиотехники, оптоэлектроники.

Главный редактор: академик РАН Р. И. Ильяев

Редакционный совет выпуска: академик В. П. Незнамов, академик Ю. А. Трутнев, Е. В. Куличкова, д-р техн. наук А. И. Астайкин, д-р техн. наук Н. А. Билык, канд. физ.-мат. наук С. В. Воронцов, д-р физ.-мат. наук А. Е. Дубинов, д-р техн. наук А. И. Коршунов, канд. физ.-мат. наук С. В. Маврин, д-р техн. наук В. Н. Морозов, д-р техн. наук С. В. Колесников, д-р физ.-мат. наук Б. А. Надькто, д-р физ.-мат. наук В. А. Раевский, д-р физ.-мат. наук В. Г. Рогачев, канд. физ.-мат. наук В. Г. Куделькин, д-р техн. наук Ю. И. Файков, канд. физ.-мат. наук В. В. Хижняков, д-р техн. наук П. Ф. Шульженко, Ю. М. Якимов.

ISBN 978-5-9515-0483-8
ISBN 978-5-9515-0485-2 (ч. 2)

© ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2019

ТРУДЫ РФЯЦ-ВНИИЭФ

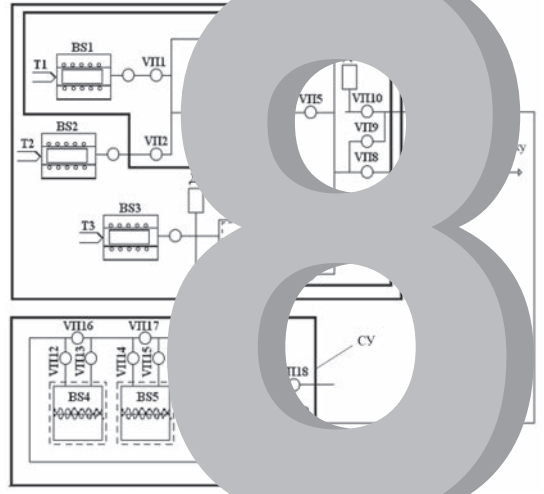
ВЫПУСК 24

Часть 2

СОДЕРЖАНИЕ РАЗДЕЛА 8

<i>Юхимчук А. А.</i> Научно-экспериментальные комплексы для безопасного обращения с тритием и его соединениями	6
<i>Горькаев Д. А., Крылова М. И., Никитин И. А.</i> Исполнительный механизм аварийной защиты реактора с автономным источником энергии на основе пиротехнического газогенератора	32
<i>Королев В. А., Казаковский Н. Т.</i> Кондиционирование органических жидких радиоактивных отходов	46
<i>Казаковский Н. Т., Леваков С. Е., Королев В. А., Орлов Д. С., Юхимчук А. А.</i> Способ кондиционирования воды, содержащей тритий	58

РАЗДЕЛ



**ИЗОТОПЫ
ВОДОРОДА –
ФИЗИЧЕСКАЯ
ХИМИЯ,
БЕЗОПАСНОСТЬ,
ЭКОЛОГИЯ**

УДК 62-9:546.11

Научно-экспериментальные комплексы для безопасного обращения с тритием и его соединениями

А. А. Юхимчук

Приводятся подходы к созданию научно-экспериментальных комплексов для безопасного обращения с тритием и его соединениями, предназначенных для работы в составе больших физических установок. Рассматриваются действующая нормативно-правовая база создания тритиевых установок, технические решения по созданию элементов установок и примеры реализации выработанных подходов.

Тритий и его свойства

В 1933 г. N. L. Gilbert высказал предположение о существовании трития [1], а в 1934 г. в Кавендишской лаборатории в группе, возглавляемой Резерфордом в экспериментах по изучению реакции $D + D$ [2], экспериментально были зарегистрированы продукты реакции ${}^3\text{He} + n$ и ${}^3\text{H} + p$, при этом тритий считался стабильным элементом. Лишь в 1946 г. W. F. Libby [3] удалось зарегистрировать его радиоактивность. Тритий является β -распадчиком. В процессе β -распада рождаются ${}^3\text{He}$, электрон e^- и электронное антинейтрино ν_e : ${}^3_1\text{H}(T) \rightarrow {}^3\text{He} + e^- + \nu_e (5,685 \text{ кэВ})$. Тритий – радиоактивный газ без цвета, запаха и вкуса. Как и все изотопы водорода, имеет высокие коэффициенты диффузии и проницаемости в материалах, в первом приближении меньше от соответствующих величин для водорода (протия) на m_T/m_H . Электронная структура, химические свойства те же, что и для протия и дейтерия, скорости химических реакций отличаются на разницу отношения масс. Однако тритий вызывает радиолит (разложение химических соединений под действием ионизирующего излучения), при этом энергия активации некоторых химических реакций может отличаться по отношению к протию и дейтерию.

В табл. 1 приведены некоторые свойства трития [4–7], которые будут полезными при создании установок и комплексов.

Таблица 1

Свойства трития

Вес: атомарный, г, молярный, г	3,01605 6,03210
Диаметр атома, ангстрем	1,1
Тип распада Продукт распада	β^- (100 %) ${}^3\text{He}$ ($m = 3,01603$ г)
Постоянная полураспада, $T_{1/2}$, лет $T_{1/2}$, дней Для учета трития (DOE, США), $T_{1/2}$, лет (РФ), $T_{1/2}$, лет	$12,232 \pm 0,004$ (1 год = 365,25 дней) $4500,88 \pm 1,46$ $12,33 \pm 0,06$ 12,3
Постоянная распада $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$, с^{-1}	$1,782 \cdot 10^{-9}$
Энергия распада: максимальная, кэВ средняя, кэВ	18,582 5,685
Тепловыделение от распада	$0,328 \text{ Вт/г} = 1,954 \text{ Вт/моль}$
Энергия ионизации $T \rightarrow T^+ e^-$, эВ $T_2 \rightarrow 2T$, эВ	13,55 4,591
Удельная радиоактивность T_2 (газ) Удельная радиоактивность $T_2\text{O}$	$355,9 \text{ ТБк/г}$ ($9,619 \text{ кКи/г}$) $2146,9 \text{ ТБк/моль}$ ($58,023 \text{ кКи/моль}$) $2,589 \text{ Ки/см}^3 = 0,386 \text{ см}^3/\text{Ки}$ (при 1 атм, 273 К) $2,372 \text{ Ки/см}^3 = 0,422 \text{ см}^3/\text{Ки}$ (при 1 атм, 298 К) 3200 Ки/см^3
Плотность T_2 (газ) при н.у., г/см^3	$2,69122 \cdot 10^{-4}$
Температура кипения при 1 атм., К	25
Пробег β -частиц в воздухе (н.у.), см, T_2 (газ н.у.), см, в воде (сухом материале, масле, полимерах при $\rho = 1 \text{ г/см}^3$), мкм, в стали, мкм	$0,036$ (5,7 кэВ); $0,45$ (18,6 кэВ) $0,26$ (5,7 кэВ); $3,2$ (18,6 кэВ) $0,42$ (5,7 кэВ); $5,2$ (18,6 кэВ) $0,06$ (5,7 кэВ)

Нормы и правила обращения с тритием и его соединениями

В РФ на сегодняшний день обращение с тритием регулируется следующими нормативными документами:

1. «Нормы радиационной безопасности» НРБ – 99/2009 [8].
2. «Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности» (ОСПОРБ – 99/2010) [9].

3. «Радиационная безопасность при работе с тритием и его соединениями» (СП РБ – РТС – 04) [10].

В зависимости от активности используемого открытого радиоактивного источника трития на рабочем месте и с учетом его радиотоксичности работы разделяются на три класса (табл. 2 [10]).

Таблица 2

Класс работ с тритием для открытых радиоактивных источников

Класс работ	Суммарная активность на рабочем месте, Бк (Ки)
I	Более 10^{14} ($2,7 \cdot 10^3$)
II	от 10^{11} до 10^{14} ($2,7-2,7 \cdot 10^3$)
III	от 10^9 до 10^{11} (0,027–2,7)

При хранении открытых радиоактивных источников в хранилищах (складах) внутри контейнеров допускается увеличение активности в 100 раз. Контейнеры для хранения трития должны иметь санитарно-эпидемиологическое заключение на соответствие санитарным правилам.

В США ядерные установки делятся по категориям риска (Hazard Category) и, также как и в РФ, зависят от количества трития. Классификация установок приведена в табл. 3.

Таблица 3

Классификация ядерных установок, содержащих тритий, в США [6]

Категория риска	Количество трития, г	Характеристика установки
I		Характерно для ядерных реакторов. Установки, работающие только с тритием, не классифицируются по этой категории
II	Более 30	
III	1,6–30	
IV	100 Ки–1,6	100 Ки – по классификации РФ, МЗА*
Нерadiационные установки	Менее 100 Ки	В случае если на этих установках не содержатся другие радионуклиды выше МЗА

Примечание: *МЗА – минимально значимая активность

В табл. 4 приведены регламентированные НРБ – 99/2009 [8] значения дозовых коэффициентов, предела годового поступления трития в организм человека с воздухом и допустимой среднегодовой объемной активности трития в воздухе для персонала, работающего с тритием.

Таблица 4

Значения дозовых коэффициентов, предела годового поступления с воздухом и допустимой среднегодовой объемной активности трития в воздухе для персонала [8]

Тип соединения при ингаляции	Дозовый коэффициент $\varepsilon_{\text{перс. Зв/Бк}}$	Предел годового поступления ППП _{ПЕРС} , Бк (Ки) в год	Допустимая среднегодовая объемная активность ДОА _{ПЕРС} , Бк/м ³ (Ки/л) в США [6]
Г1 – пары тритированной воды	$1,8 \cdot 10^{-11}$	$1,1 \cdot 10^9(0,03)$	$4,4 \cdot 10^5(1,2 \cdot 10^{-8})$ $7 \cdot 10^5$
Г2 – газообразный тритий	$1,8 \cdot 10^{-15}$	$1,1 \cdot 10^{13}(300)$	$4,4 \cdot 10^9(1,2 \cdot 10^{-4})$ $9 \cdot 10^9$
Г3 – тритированный металл	$1,8 \cdot 10^{-13}$	$1,1 \cdot 10^{11}(3)$	$4,4 \cdot 10^7(1,2 \cdot 10^{-6})$

Примечание: жирным шрифтом – дозовые нагрузки на персонал в США

Как видно из таблицы, допустимые дозовые нагрузки на персонал в США примерно в 2 раза выше, чем в РФ.

Для каждого из классов нормативными документами [8–10] четко оговаривается организация работ: лицензирование, устройство площадок и помещений, требования к оборудованию, вентиляции, водоснабжению и канализации, организации радиационного контроля и т.п. Однако, как было сказано ранее, в ряде случаев для экспериментальных установок и комплексов выполнение всех этих требований в полном объеме не представляется возможным и требуется выработка новых подходов и технических решений, позволяющих создавать радиационно-безопасное оборудование для работ с тритием на действующих физических установках с соблюдением нормативной базы РФ.

К таким решениям можно отнести:

– создание устройств, содержащих тритий или его соединения, классифицируемых как закрытые радиоактивные источники. Согласно НРБ-99/2009 [8] «Источник радионуклидный закрытый – источник излучения, устройство которого исключает поступление содержащихся в нем радионуклидов в окружающую среду в условиях применения и износа, на которые он рассчитан»;

– использование в работе МЗА трития для открытых источников. Согласно НРБ-99/2009 [8], МЗА по тритию составляет 10^9 Бк ($0,027$ Ки)*, а минимально значимая удельная активность (МЗУА) – 10^6 Бк/г ($2,7 \cdot 10^{-5}$ Ки/г).

Подходы к построению тритиевых систем и установок

Существуют различные подходы по общей компоновке тритиевых установок исследовательского класса. Однако при всех подходах сохраняется принцип тройного рубежа защиты для элементов установки, несущих в себе повышенную опасность, например, тритий находится под давлением выше атмосферного и двойного рубежа – при низких (до 10 Ки) активностях трития или пониженных давлениях тритийсодержащей среды. В ряде случаев (например, [11]) построе-

* Для сравнения: в США эта величина составляет 100 Ки, а в Швейцарии – 80 Ки, что более чем на три порядка выше принятых в РФ норм.

ние установки не отходит от традиционной схемы (рис. 1), присущей специализированным тритиевым лабораториям, когда оборудование размещается в изолированном вентилируемом домике. Для этих целей создаются, как правило, металлические домики относительно больших объемов (вплоть до 100 м^3) в которых размещаются герметичные перчаточные боксы объемом $0,5\text{--}5 \text{ м}^3$ с функциональным оборудованием внутри. В процессе нормальной работы вентиляционный поток воздуха внутри домика составляет $500\text{--}600 \text{ м}^3/\text{час}$ (5–6-кратный обмен в час), в случае крайней необходимости поток может быть увеличен до $6000 \text{ м}^3/\text{час}$ (60-кратный обмен в час). Весь этот поток поступает в вентиляционную трубу, высота которой достигает нескольких десятков метров. Вентиляционная система, как правило, имеет резервный источник энергопитания на случай возникновения неисправностей основной системы. Перчаточные боксы, помещенные в такой домик, работают под небольшим избыточным давлением порядка 10–30 мм вод. ст. инертной среды (как правило, это чистый Ar). Однако в процессе монтажа (демонтажа) тритийсодержащих узлов в боксе создается разрежение примерно тех же 10–30 мм вод. ст.

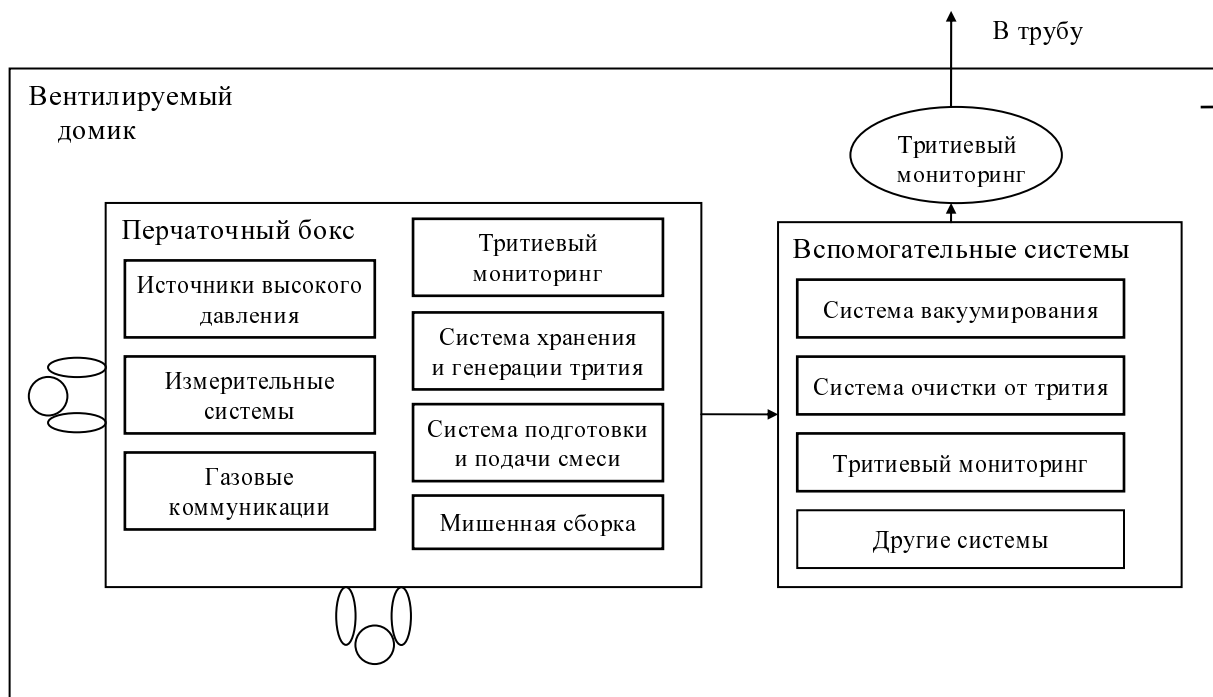


Рис. 1. Функциональная схема построения тритиевой установки с использованием вентилируемого домика

Утечки среды бокса в процессе его эксплуатации не должны превышать 10^{-5} Торр л/с. Бокс оборудован системой радиационного мониторинга утечек трития в среду бокса из газовых коммуникаций системы тритиевого обеспечения. Уровень объемной активности в боксе не более $3,7 \cdot 10^7 \text{ Бк/м}^3$ (10^{-6} Ки/л) поддерживается замкнутой системой тритиевой очистки, через которую рециркулирует среда бокса. Очистка производится на интерметаллидных ловушках. Перед любым сбросом среды бокса в вентиляционную трубу последняя в обязательном порядке проходит через систему тритиевой очистки.

Как видно из вышеприведенного описания построения установок на базе вентилируемых домиков, тройной рубеж защиты в этом случае обеспечивается следующим образом:

- первый рубеж – собственно функциональные газовые коммуникации тритиевой установки;
- второй рубеж – перчаточный бокс, находящийся под избыточным давлением инертной среды. В боксе контролируется радиационная обстановка и происходит постоянная очистка его среды;
- третий рубеж – вентилируемый домик.

В случае разгерметизации функциональных газовых коммуникаций тритий, попавший в среду бокса, будет удален из него с помощью системы тритиевой очистки. В аварийных ситуациях при разгерметизации бокса тритий может выйти за его пределы. В этом случае он окажется внутри вентилируемого домика и будет выброшен в вентиляционную трубу. Доступ оперативного персонала к установке в этом случае осуществляется в средствах индивидуальной защиты, снабженных независимой системой подачи воздуха.

Двойной рубеж защиты в таких установках обеспечивается следующим образом:

- первый рубеж – газовые коммуникации вспомогательных систем установки, находящиеся под избыточным давлением, но при низкой объемной активности тритийсодержащей смеси;
- второй рубеж – вентилируемый домик.

В этом случае разгерметизация первого рубежа приведет к незначительному выходу трития в вентилируемый домик и удалению его в вентиляционную трубу.

Существует и другой подход к построению тритиевых установок высокого давления [12–16], который позволяет работать вне специализированных тритиевых лабораторий без создания вентилируемых домиков. Функциональная схема такой установки представлена на рис. 2. В этом

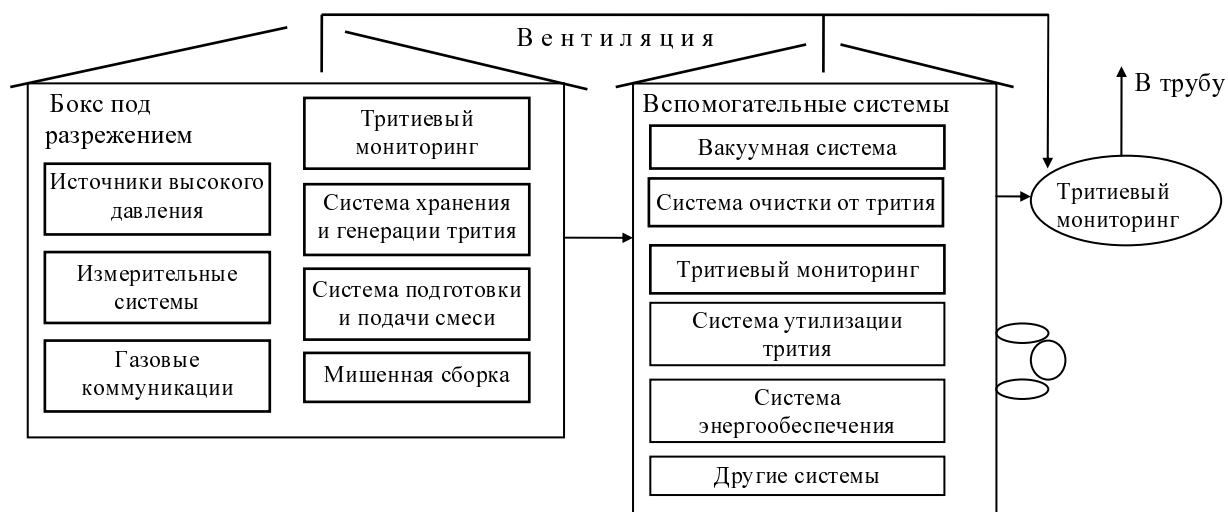


Рис. 2. Функциональная схема построения тритиевых установок без использования вентилируемых домиков

случае функциональное оборудование высокого давления помещается в герметичный бокс (как правило, не перчаточный), имеющий дистанционное управление вентилями либо с помощью электроприводов, либо ручное с помощью уплотненных удлинительных тяг. Бокс заполнен инертным газом и заведомо находится под разрежением, величина которого рассчитывается из условия, что если весь имеющийся в функциональных коммуникациях газ выйдет за их пределы, то, с учетом температурных колебаний внутри бокса, давление в нем будет ниже атмосферного.

Среда бокса постоянно контролируется с помощью проточной ионизационной камеры (рециркуляция среды через камеру обеспечивается малогабаритным герметичным компрессором) либо с помощью диффузионной ионизационной камеры, смонтированной непосредственно внутри бокса. Как правило, размеры таких боксов невелики, объем их не превышает 0,3–0,5 м³. Бокс соединен с системой очистки газовой среды от трития, оборудован системой питания инертным газом, системой продувки воздухом, вытяжной вентиляцией (при необходимости) и другими технологическими коммуникациями и измерительными устройствами. В случае превышения уровня радиационного фона в боксе производится очистка его газовой среды, при этом содержимое бокса рециркулирует через систему газовой очистки до тех пор, пока уровень загрязненности бокса не достигнет допустимой величины. В случае необходимости смены среды в боксе производится вакуумирование бокса с помощью форвакуумных насосов. Выхлоп насосов контролируется системой раннего предупреждения, в функции которой входит предотвращение выброса в окружающую среду газа с объемной активностью, превышающей установленный порог срабатывания системы. При превышении установленного порога автоматически срабатывает электромагнитный клапан, запирающий выход газа в вентиляционную трубу, выключается насос и газовая среда направляется на повторную очистку.

Вспомогательные газовые коммуникации бокса, которые всегда находятся при давлении ниже атмосферного, размещаются в вытяжных шкафах, среда которых постоянно контролируется с помощью радиометра с проточной ионизационной камерой.

При такой схеме построения установки тройной рубеж защиты обеспечивается следующим образом:

- первый рубеж – как и в первом случае, собственно функциональные газовые коммуникации тритиевой установки;
- второй рубеж – пониженное давление инертной среды бокса;
- третий рубеж – герметичный бокс или иные конструкции, обеспечивающие поддержание во втором рубеже давления ниже атмосферного.

При разгерметизации первого рубежа тритий попадает в среду бокса, при этом давление в боксе остается ниже атмосферного, что предотвращает дальнейшее распространение трития. После того как факт поступления трития в среду бокса будет зафиксирован, производится очистка бокса. Разгерметизация самого бокса фиксируется повышением в нем давления. При этом все операции с тритием прекращаются, управление установкой переводится в режим постоянной очистки среды бокса и ведется поиск и устранение течи.

Двойной рубеж защиты в таких установках обеспечивается следующим образом:

- первый рубеж – вспомогательные газовые коммуникации установки, находящиеся под давлением ниже атмосферного;
- второй рубеж – вытяжные шкафы.

При разгерметизации первого рубежа в газовых коммуникациях установки произойдет падение вакуума, которое будет зафиксировано приборами, что свидетельствует о нештатном состоянии установки. При этом, за счет диффузии, незначительное количество трития может выйти во второй рубеж, что будет зафиксировано приборами радиационного контроля и удалено с помощью вытяжной вентиляции.

Известны тритиевые установки высокого давления [17], которые используют лишь два радиационных рубежа защиты, тем не менее наиболее опасные устройства этих установок выполнены с тройным рубежом защиты.

Типовое оборудование для работы с тритием

К функциональным элементам тритиевых установок высокого давления относятся те элементы, которые, собственно, и обеспечивают выполнение основных функций данной установки. Это компримирующие устройства; устройства хранения, очистки и подготовки рабочей смеси; средства контроля и измерений температуры, давления, состава смеси (при необходимости) и других параметров; арматура газовых коммуникаций.

Компримирующие устройства

В качестве компримирующих устройств в тритиевых установках высокого давления могут использоваться [18–20]: механические устройства (дожиматели [14], мультипликаторы [21, 22], мембранные компрессоры [14]), тепловые насосы [17] (насосы на базе фазовых превращений), металлгидридные генераторы [18–21]. Каждое из этих устройств имеет свои положительные и отрицательные стороны, и выбор того или иного устройства диктуется условиями проведения эксперимента. Зачастую в одной и той же установке для разных операций может использоваться сочетание вышеперечисленных способов и устройств.

Преимущества, недостатки и возможные области применения каждого из этих устройств приведены далее.

Механические устройства:

преимущества: работа при комнатных температурах, возможность получения высоких [23, 24] давлений, высокая производительность, широкая известность применяемого принципа и, как следствие, наличие промышленно выпускаемых образцов;

недостатки: сложность конструкции, наличие подвижных элементов, низкая чистота газа, высокие габаритно-весовые характеристики, относительно высокие (1–15 МПа) начальные давления питания, высокое давление во вспомогательных газовых коммуникациях, а соответственно большой удельный вес балластного газа;

возможная область применения: области, где требуются повышенные давления (более 100 МПа) и в которых не регламентируются чистота газа и его суммарная активность.

Тепловые насосы:

преимущества: низкие давления во вспомогательных газовых коммуникациях (менее 0,1 МПа) и, соответственно, малый удельный вес балластного газа, высокие (до 200 МПа) [25–27] рабочие давления, отсутствие источника примесей;

недостатки: наличие криогенной техники, позволяющей получать температуры менее 20 К;

возможная область применения: как правило, это устройства, в которых, собственно, и происходят исследуемые процессы.

Металлогидридные генераторы:

преимущества: высокие (до 400 МПа) [18–20] рабочие давления, дополнительная очистка газа от примесей, низкие равновесные давления в условиях длительного хранения, простота конструкции, возможность плавного реверсивного изменения давления;

недостатки: повышенная температура генерации газа, что приводит к диффузионным утечкам газа, высокое давление во вспомогательных газовых коммуникациях и большой удельный вес балластного газа;

возможная область применения: длительное безопасное хранение трития, области, где требуются повышенные давления, и регламентируется чистота газа [12, 13].

Устройства хранения изотопов водорода

Нерадиоактивные изотопы водорода, как правило, хранятся в стандартных баллонах под давлением до 15 МПа, хотя по удельным характеристикам и соображениям безопасности их удобнее хранить на гидридах металлов. Так, для хранения 21 кг H_2 [28] в газообразном виде при 14 МПа необходим контейнер массой 1020 кг и объемом $1,869 \text{ м}^3$, а при хранении этого же количества на гидриде ванадия 40 %-й пористости масса контейнера будет практически той же – 1080 кг, а объем – $0,312 \text{ м}^3$, что в 6 раз меньше, да и давление при температуре хранения будет меньше атмосферного, а при необходимости получения давления 14 МПа данный гидрид надо нагреть лишь до температуры $\sim 100^\circ\text{C}$.

Тритий хранят, как правило, в металлгидридных ловушках (в основном, урановых), хотя могут применяться и малогабаритные баллоны [6, 14].

Устройства очистки изотопов водорода

Очистку изотопов водорода от примесей можно проводить следующими методами [29]: металлгидридным, твердофазными реакциями, конденсацией, адсорбцией с каталитической конверсией примесей, изотермической циклической адсорбцией, разделением на микропористых полимерных мембранах, разделением на палладиевых мембранах, электрохимическим с твердым полимерным электролитом. Однако для наших целей чаще всего применяются: разделение на палладиевых мембранах, металлгидридная очистка, конденсация. При этом, в случае хранения изотопов водорода на металлгидридах очистка изотопов водорода получается автоматически. Криогенная очистка осуществляется прокачкой водорода через устройства, охлажденные, как правило, до температуры жидкого азота, и применяется в тех случаях, когда чистота смеси особо не регламентируется. В случае жесткой регламентации по чистоте газа используются палладиевые мембраны. На практике широко применяется два типа мембран: пластинчатые и трубчатые. Диапазон давлений, при которых работают мембраны, не очень высок ($0,3\text{--}3 \text{ МПа}$). Однако, в РФЯЦ-ВНИИЭФ разработаны и успешно эксплуатируются палладиевые мембраны [30], работающие при давлениях до 80 МПа. Эти мембраны изготовлены из капиллярных трубок диаметром $0,5 \times 0,15$ палладий-серебряного сплава В1.

Системы подготовки рабочей смеси

Система подготовки смеси включает в себя калиброванный объем, оснащенный точными датчиками давления. В объем подается один из компонентов смеси, по величине давления рассчитывается необходимое количество данного компонента, затем отмеренное количество газа направляется либо непосредственно в приемник (например, сосуд, находящийся при температуре 20 К [17]), либо на металлгидридную ловушку [12, 13, 31], в зависимости от того, с каким молекулярным составом смеси в последующем будет производиться работа. После этой процедуры мерный объем вакууммируется, а затем в нем тем же образом отмеряется следующий компонент смеси. В случае необходимости работы с равновесным молекулярным составом смеси может производиться ее гомогенизация [12, 13, 31].

Средства измерения давления

Диапазон измеряемых давлений в тритиевых установках высокого давления довольно широк – от 10^{-4} Па до нескольких сотен МПа. Для измерения низких давлений (10^{-4} – 10^2 Па) после соответствующей доработки используются стандартные ионизационные и термоэлектрические преобразователи. Для обеспечения безопасности эти преобразователи помещаются в герметичные защитные кожуха. Диапазон давлений от 10^2 Па до 0,3 МПа измеряется обычными мановакуумметрами с трубкой Бурдона либо дифференциальными тензометрическими преобразователями. Диапазон давлений 0–600 МПа измеряется тензометрическими преобразователями давления (strain-gauge pressure transducers) [14] либо пьезоэлектрическими кварцевыми датчиками давления [22] (piezoelectric quartz pressure transducer). Причем, номинал датчика по давлению выбирается таким образом, чтобы обеспечить максимальную чувствительность датчика при минимальной погрешности измерений в заданном диапазоне. Это означает, что рабочий диапазон давлений может измеряться несколькими датчиками различного номинала.

Средства измерения состава смеси

Во многих случаях при проведении экспериментов необходимо знать не только изотопный состав смеси, но и ее молекулярное, а иногда и спиновое состояние. Наиболее распространенными на сегодняшний день методами измерения состава смеси являются масс-спектрометрический [17] и хроматографический [32], кроме того используется радиохроматографический [11, 33] метод. Все они основаны на отборе проб, т. е. анализ производится вне того объема, где находится анализируемая смесь. В работах [12, 13, 34] было показано, что данные методы могут искажать результаты измерений молекулярного состояния смеси. Более тщательное рассмотрение этого вопроса [35, 36] показало, что существует методическая ошибка при измерении этими методами. Здесь же был сделан вывод о том, что наиболее достоверным методом анализа молекулярного состава смеси является спектроскопический метод, основанный на комбинационном рассеянии света (КРС). В настоящее время КРС методики анализа изотопного и молекулярного состава смесей изотопов водорода активно внедряются в практику [37–40].

Средства измерения активности трития

Одним из основных условий безопасной работы тритиевых установок является своевременное детектирование утечек трития. Для этих целей применяются радиометры с ионизационными камерами. При этом анализируемая среда подается вовнутрь камеры. Для постоянного контроля необходимо обеспечить постоянный доступ анализируемой среды в камеру. Это достигается либо прокачкой анализируемой среды через внутренний аналитический объем камеры, либо помещением ионизационной камеры непосредственно в анализируемую среду (герметичный бокс). Во втором случае наружный корпус камеры выполняется таким образом, чтобы с одной стороны обеспечить беспрепятственный доступ анализируемой среды к собирающему электроду, а с другой – обеспечить экранирование электрических наводок. В настоящее время выпускается довольно широкий набор радиометров для измерения объемной активности трития в воздухе. Ряд из этих приборов приведен в табл. 5.

Характеристики радиометров для измерения объемной активности трития в воздухе

Наименование прибора	Тип детектора	Объем детектора, чувствительный (общий), см ³	Нижний предел измерения, Бк/м ³
Дозиметр портативный (UCRL-50007-68-2, 1968)	Газовый счетчик с тонким окном большой площади		$2 \cdot 10^5$
LB 110 стационарный (Германия)	Газовый счетчик внутреннего наполнения, прокачка 0,17 л/мин	325 (1300)	$0,9 \cdot 10^3$
ТМН2 переносной (Германия)	Газовый счетчик внутреннего наполнения, прокачка 0,25 л/мин	110 (300)	$1,5 \cdot 10^4$
750 SBA JC носимый (Франция)	Прокачная ионизационная камера, 4 л/мин	750	$1,1 \cdot 10^6$
РГБ3-01 носимый (Россия)	Прокачная ионизационная камера, 7 л/мин	800	$1,5 \cdot 10^6$
Радиометр газов РГБ-06 (Россия)	Прокачная или диффузионная рабочая камера	10000	$5 \cdot 10^4$
Блок детектирования БДГБ-14И (Россия)	Прокачная рабочая камера	10000	$4 \cdot 10^4$
Блок детектирования БДГБ-14И-1 (Россия)	Диффузионная рабочая камера	200	$4 \cdot 10^7$

Рабочие камеры (мишени) высокого давления

Конструкции рабочих камер могут быть совершенно разными, в зависимости от того, какие требования предъявляются к ним по условиям эксперимента: уровень давлений, диапазон рабочих температур, ресурс, требования по чистоте дейтерий-тритиевой смеси и т. д. Свободный внутренний объем камеры должен быть минимально возможным, чтобы с одной стороны удовлетворить требованиям проведения экспериментов, а с другой – обеспечить присутствие минимально возможного количества тритийсодержащего газа. Основными вопросами при создании камеры являются вопросы обеспечения прочностной надежности и радиационной безопасности, связанной с проницаемостью трития через оболочку камеры [41]. Решение этих вопросов осуществляется:

– выбором соответствующего конструкционного материала, обладающего достаточной водородной и тритиевой стойкостью и необходимыми прочностными характеристиками при низких коэффициентах проницаемости трития (например, бериллиевая бронза (beryllium-copper alloy) [22] или высокопрочные никелевые сплавы аустенитного класса [23, 42–45]);

– защитой внутренней поверхности силового корпуса металлом, слабо взаимодействующим с водородом и имеющим низкие коэффициенты проницаемости трития (например, золотом [46], медью [14], нитридом титана [25] и т. п.);

– созданием конструкции с высокими удельными прочностными характеристиками, обладающей вакуумно-газовым тритиевым барьером [25, 47, 48].

Для обеспечения безопасности проведения работ рабочие камеры непосредственно соединяются с датчиками давления и имеют, как правило, два запирающих вентиля, чтобы в случае неисправности одного из них можно было произвести сброс газа с рабочей камеры с помощью другого.

Обеспечение безопасности тритиевых установок

Резервные источники электропитания. Все исполнительные механизмы устройств, в которых в случае выхода из строя электропитания может реализоваться аварийная ситуация, и контрольные приборы этих устройств должны иметь резервные источники питания на случай перебоя основного электропитания. Это приборы радиационного контроля; приборы контроля за состоянием аварийно-опасных устройств; энергопотребляющие элементы аварийно-опасных устройств; двигатели системы вентиляции. В качестве резервных источников могут использоваться мотор-генераторы на базе двигателей внутреннего сгорания, аккумуляторные батареи и другие источники питания, обеспечивающие безопасную эксплуатацию установки на время эвакуации трития и приведения ее в безопасное состояние.

Аварийная система эвакуации тритийсодержащего газа. Установка должна быть оборудована средствами, которые в случае непредвиденных обстоятельств позволили бы хранить тритийсодержащий газ либо в связанном состоянии, либо при давлениях ниже атмосферного.

В первом случае используются металлгидридные ловушки на основе гидридообразующих металлов или сплавов, например: уран, цирконий, титан. При этом расчетное количество металлгидрида в ловушках должно быть таким, чтобы как минимум с двойным запасом обеспечить эвакуацию всего газа, имеющегося в коммуникациях.

Во втором случае используются вакуумированные ресиверы, объем которых выбирается таким образом, чтобы после напуска в них всего имеющегося в коммуникациях газа давление в них не превысило атмосферного.

Организационные меры. К работе на установке допускается специально обученный персонал. Разрабатывается технологическая карта (инструкция), по которой будут проводиться работы. Перед работой с тритием, с целью тренировок персонала и отработки режимов работы установки, проводится полный цикл работ с одним из нерадиоактивных изотопов водорода. Моделируются возможные аварийные ситуации, и разрабатываются приемы по выходу из них. В случае круглосуточной работы организовываются смены, в состав которых входят руководитель смены и, как минимум, два человека оперативного персонала.

Технические меры. Все аварийно-опасные узлы установки должны быть оснащены блокирующими устройствами, которые не позволяли бы произвести несанкционированное действие, в результате которого могла бы произойти аварийная ситуация. Для контроля за состоянием узлов установки применяется мнемосхема. Кроме того, для этих целей в настоящее время используются системы автоматического контроля и управления на базе персонального компьютера. Эти системы позволяют:

- контролировать правильность действий оперативного персонала, звуковым и световым образом оповещать об ошибках;
- не допускать выполнения операций, в результате которых может произойти нештатная ситуация работы системы;
- отображать текущее состояние узлов установки;
- вести протокол работы установки;
- по требованию оператора вести поиск необходимой информации;
- в on-line режиме обрабатывать результаты эксперимента и т. п.

Радиационный мониторинг. Помимо функционального оборудования, в состав которого входят приборы дозиметрического контроля, радиационная обстановка должна контролироваться в зоне работы оперативного персонала, на всех выходах вытяжных шкафов и в вентиляционной трубе на выбросе в атмосферу.

Примеры построения тритиевых систем для проведения фундаментальных исследований

Комплекс подготовки газовой смеси изотопов водорода для исследований мюонного катализа

Для систематических исследований мюонного катализа ядерных реакций синтеза в тройных смесях изотопов водорода Н/Д/Т в диапазоне температур 20–800 К, давлений до 120 МПа и активностях трития в свободном состоянии до 10 кКи совместными усилиями РФЯЦ-ВНИИЭФ и Лаборатории ядерных проблем (ЛЯП) Объединенного института ядерных исследований (ОИЯИ) (Дубна) создана установка ТРИТОН, которая состоит из: комплекса для подготовки газовой смеси (КПГС) [31], криогенной установки [49], системы детектирования и регистрации продуктов ядерных реакций [50] и ряда сменных мишеней [51–56].

КПГС предназначен для обеспечения безопасного проведения работ с тритием в количествах до 1 г (10 кКи) при подготовке смеси заданного изотопного состава чистотой 10^{-7} об. долей по примесям с $Z > 4$, подаче ее в мишень и утилизации после завершения работ. Одним из основных требований при создании КПГС являлось обеспечение радиационной безопасности проводимых на нем работ. С этой целью на любом возможном пути проникновения трития в атмосферу обеспечено три рубежа защиты для элементов установки, находящихся под давлением трития выше атмосферного, и два рубежа для остальных коммуникаций – при низких (до 10 Ки) активностях трития или пониженных давлениях тритийсодержащей среды.

Работы по созданию комплекса были начаты в сентябре 1995 г., а в декабре 1996 г. комплекс был смонтирован в низкофоновой лаборатории фазотрона ЛЯП ОИЯИ. В 1997–1998 гг. на установке ТРИТОН были проведены эксперименты прямого измерения коэффициента прилипания ω_s и выхода нейтронов в бинарной и тройной смесях изотопов водорода при 20 К и прямого измерения выхода нейтронов в газообразной смеси изотопов водорода при 300–800 К и давлении до 120 МПа. Комплекс успешно эксплуатируется и в настоящее время. В мае 2016 г. был проведен сеанс по измерению парциальных выходов каналов ядерных реакций в системе $p\mu\mu$ [57]. За это время в КПГС было использовано более 100 кКи трития. В течение 20 лет КПГС работал надежно, превышения установленных норм по объемному содержанию трития в рабочей зоне и вытяжной вентиляции зафиксировано не было.

Конструктивно комплекс состоит из десяти связанных между собой установок и систем (рис. 3) [31]:

- герметичного бокса, в котором расположены основные функциональные элементы КПГС, обеспечивающие подготовку смеси заданного состава и чистоты и подачу ее к мишени;
- вакуумного пульта, обеспечивающего вакуумирование рабочих газовых коммуникаций, утилизацию основного количества тритийсодержащей газовой смеси и молекулярный анализ газовой смеси;
- ресивера, предназначенного для сброса «хвостов» газовой смеси с выхлопов формакуумных насосов;
- установки газовой очистки, предназначенной для очистки газовых смесей от следов трития и его соединений, находящихся в герметичных объемах (боксе, ресивере и т. п.);
- установки раннего предупреждения выбросов, предназначенной для предотвращения выбросов в атмосферу газовых смесей, содержащих тритий выше установленных норм;
- сборки насосов, обеспечивающей вакуумирование газовых коммуникаций, герметичных технологических объемов, ресивера и т. п.;

– баллонного поста, обеспечивающего подачу диффузионно чистых протия и дейтерия к КПГС, заполнение герметичных технологических объемов инертным газом и питание газового радиохроматографа газом-носителем;

– системы радиометрического контроля, обеспечивающей контроль состояния элементов КПГС и радиационной обстановки в рабочей зоне;

– электрического пульта, обеспечивающего управление и контроль КПГС и мишенями;

– автоматизированной системы контроля, обеспечивающей контроль состояния основных элементов КПГС и мишеней, а также автоматическую запись протокола эксперимента.

Разделение комплекса на отдельные независимые установки позволило ускорить его проектирование, изготовление и отладку. Кроме того, такое построение КПГС позволило осуществить его транспортировку в 1996 г. из Арзамаса-16 в Дубну в виде отдельных независимых работающих установок без их демонтажа, последующей сборки и сколько-нибудь существенной наладки.

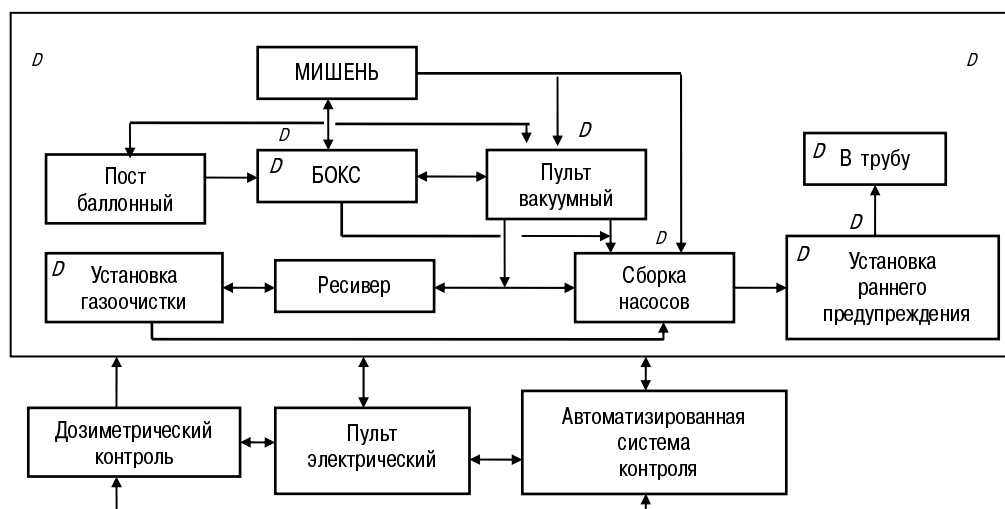


Рис. 3. Структурная схема КПГС [31]: D – точка дозиметрического контроля

Комплекс оборудования для исследований нейтронно-избыточных ядер

Исследование структуры экзотических легких ядер и ядерных систем, находящихся на границе нейтронной стабильности, имеет фундаментальное значение в ядерной физике и представляет в настоящее время одно из центральных направлений в изучении ядерной структуры. Реакции передачи нуклонов с применением пучков радиоактивных ядер предоставляют очень хорошие возможности для таких исследований.

В рамках создания ускорительного комплекса радиоактивных пучков (проект DRIBs) было предусмотрено получение пучков молекулярных ионов изотопов водорода, включая тритий, что позволяло приступить к экспериментам по изучению резонансных состояний ядер ${}^4\text{H}$ и ${}^5\text{H}$, образующихся в реакциях $t+t \rightarrow {}^5\text{H}+p$, $t+t \rightarrow {}^4\text{H}+d$ и $t+d \rightarrow {}^4\text{H}+p$. Доставка на мишень первичного пучка тритонов, ускоренных на циклотроне У-400М, осуществлялась с помощью сепаратора АКУЛИНА [58]. Требуемая интенсивность пучка ионов трития на мишени должна быть порядка 10^8 ион/с, а с учетом потерь при транспортировке и монохроматизации пучка интенсивность ускоренного пучка ионов трития должна составлять 10 нА ($6 \cdot 10^{10}$ ион/с).

Для решения этой задачи в РФЯЦ-ВНИИЭФ была создана система, предназначенная для подачи в высокочастотный источник ионов циклотрона У-400М Лаборатории ядерных реакций (ЛЯР) ОИЯИ изотопных молекул водорода при заданном соотношении их потоков и концентраций и утилизации смеси изотопов водорода после завершения работ [59].

Система подачи изотопов водорода (СПИВ) состоит из трех функционально связанных между собой структурных элементов:

- блока подачи изотопов водорода (БПИВ), обеспечивающего подачу изотопных молекул водорода заданного состава в ионный источник циклотрона У-400М и тонкую регулировку потоков этих молекул;

- системы утилизации (СУ) трития при проведении технологических операций с газовыми коммуникациями СПИВ и очистке криогенных насосов ионного источника циклотрона У-400М;

- автоматизированной системы контроля и управления (АСКУ), обеспечивающей контроль состояния элементов комплекса, автоматическое поддержание рабочих параметров, графическое и цифровое отображение контролируемых процессов, ведение протокола эксперимента и дистанционное (с пульта циклотрона) управление элементами системы.

Принципиальная схема СПИВ представлена на рис. 4, а ее общий вид – на рис. 5.

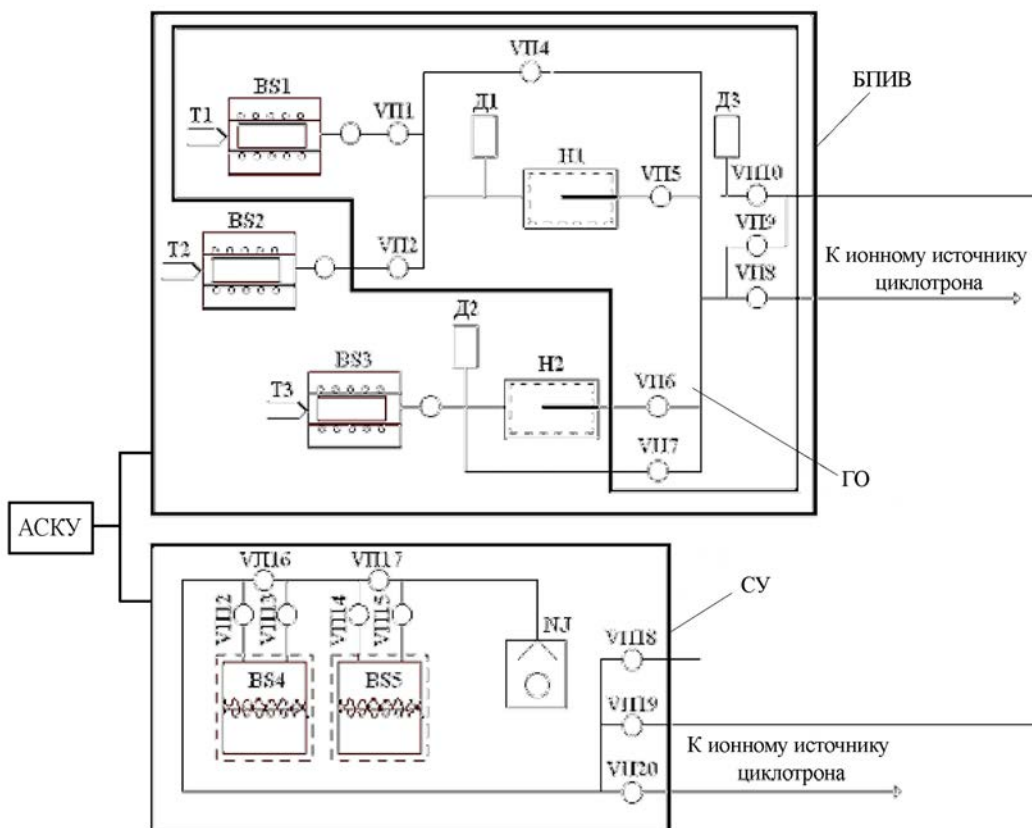


Рис. 4. Принципиальная схема СПИВ [54]: BS1–BS3 – источники ИВ; BS4–BS5 – поглотители ИВ; H1, H2 – натекатели; Д1–Д3 – датчики давления (CMR271, APR266 и TPR261 соответственно); NJ – насос форвакуумный (ВОС EDWARDS GVSP30); VP – вентили сильфонные вакуумные; Т – термомпары; ГО – герметичный объем; АСКУ – автоматизированная система контроля и управления

Структура и конструктивное исполнение системы и ее элементов диктовались требованиями к параметрам смеси изотопов водорода, подаваемой в ионный источник, и правилами соблюдения норм радиационной безопасности при работе с тритием. Основные решения газовой схемы СПИВ, использованные авторами при ее разработке, приведены в работе [60].

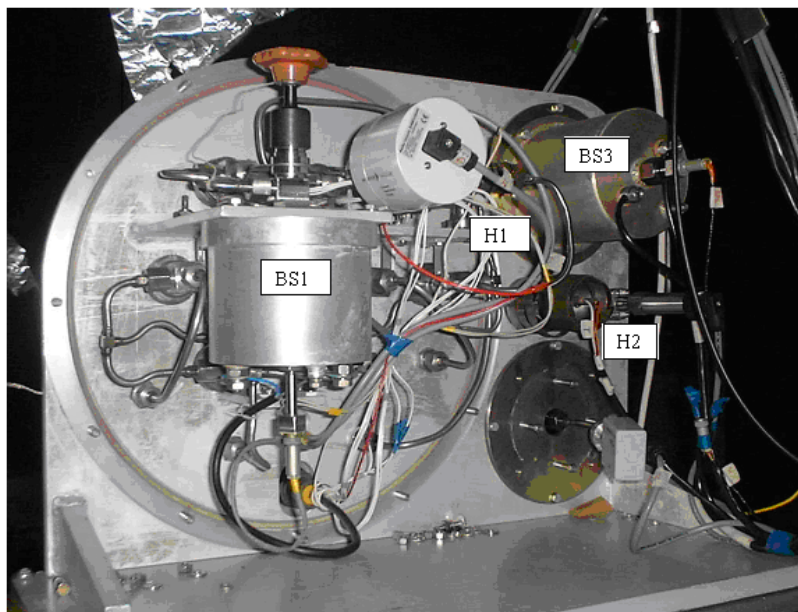


Рис. 5. Общий вид СПИВ со снятым колпаком защитного бокса [59]: BS1, BS3 – источники ИВ в комплекте с электронагревателем и термопарой; H1, H2 – натекатели

При настройке ионного источника требуются потоки изотопов водорода до нескольких $\text{см}^3/\text{час}$. В то же время существуют серьезные ограничения по количеству используемого трития – из-за отсутствия свободного места на циклотроне было невозможно соорудить каких-либо вытяжных шкафов для работы с тритием, а величина наведенной активности в процессе работы циклотрона исключала применение ионизационных камер для детектирования возможных утечек трития. Поэтому было принято решение ограничить количество газообразного трития, используемого в эксперименте, величиной МЗА по НРБ-99 – 10^9 Бк или $0,01 \text{ см}^3$ при нормальных условиях.

Таким образом, СПИВ при настройке ионного источника должна обеспечивать потоки протия и дейтерия до нескольких $\text{см}^3/\text{ч}$, а в рабочем режиме потоки смеси дейтерия (99 %) и трития (1 %) должны регулироваться в пределах $0,01\text{--}0,1 \text{ см}^3/\text{ч}$. Реальные потоки трития не превышали $0,01 \text{ см}^3/\text{час}$, что позволяло проводить физические сеансы в течение 100 ч.

Для проведения этих же исследований были созданы тритиевая мишень и комплекс оборудования [61], позволяющий проводить ее заполнение тритием, эвакуацию и утилизацию трития из мишени, контроль радиационной обстановки как в технологических коммуникациях, так и в помещении, где проводятся работы.

Данный комплекс введен в эксплуатацию на тритиевом пучке сепаратора АКУЛИНА циклотрона У-400М ЛЯР ОИЯИ [58], что позволило, начиная с декабря 2000 г., проводить систематические исследования экзотических нейтроноизбыточных систем.

Конструктивно комплекс состоит из четырех функционально взаимосвязанных между собой систем (рис. 6):

- мишенного блока (МБ), расположенного во внутренней полости реакционной камеры (РК) сепаратора АКУЛИНА [58] и обеспечивающего радиационно-безопасное хранение трития в процессе эксперимента в жидком или газообразном состоянии при заданной температуре;
- системы наполнения (СН), обеспечивающей подачу в мишень изотопов водорода или гелия и позволяющей многократно использовать один и тот же изотоп при смене газа в мишени;
- системы утилизации трития и контроля радиационной обстановки (СУ) при проведении работ с тритием;
- автоматизированной системы контроля и управления (АСКУ), обеспечивающей контроль состояния элементов комплекса, автоматическое поддержание рабочих параметров, ведение протокола эксперимента, графическое и цифровое отображение контролируемых процессов.

Принципиальная схема комплекса представлена на рис. 6, общий вид комплекса, установленного на сепараторе АКУЛИНА, – на рис. 7. Основное внимание при создании комплекса было уделено обеспечению норм радиационной безопасности при работе с тритием, что и предопределило структуру и конструктивное исполнение элементов комплекса.

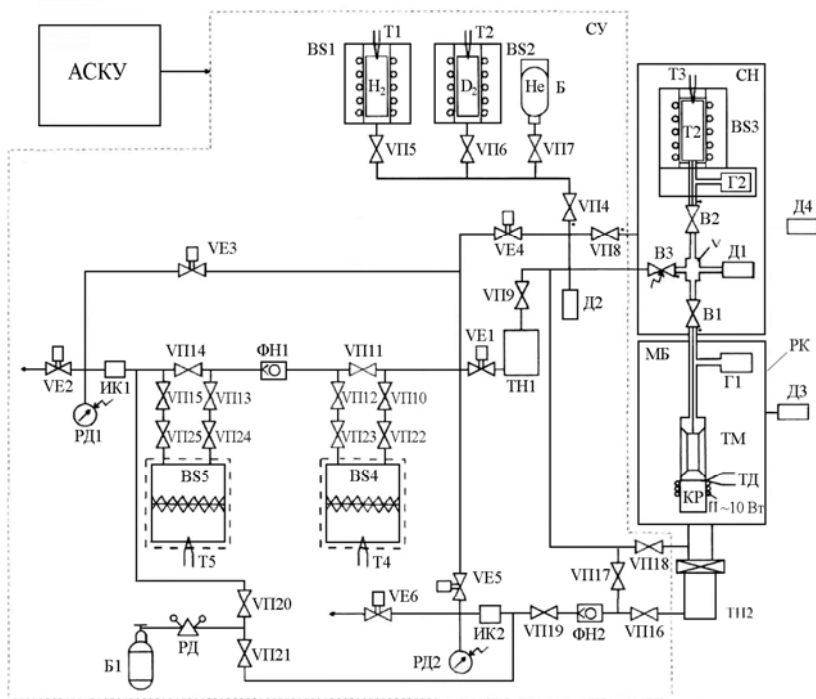


Рис. 6. Принципиальная схема комплекса: АСКУ (расшифровку см. под рис. 4); СН – система наполнения; СУ – система утилизации и контроля радиационной обстановки; МБ – мишеный блок; РК – реакционная камера; BS1(2) – источник протия (дейтерия); BS3 – источник трития; BS4(5) – ловушка; Б Б(1) – баллон с гелием; Д1(4) – измеритель вакуума (PRK261); Д2 – датчик давления (TRK261); Д3 – датчик давления (CMR261); ИК1 (2) – ионизационная камера; РД1 (2) – электроконтактный мановакуумметр (ДА2005); ФН1 (2) – насос форвакуумный (BOC EDWARDS GVSP30); ТН1 (2) – насос турбомолекулярный (STP 300M); В1–3, VP22–25 – вентили сильфонные вакуумные; VE1–6 – вентили электромагнитные; П ~10 Вт – электропечь сопротивления мощностью ~10 Вт; V – мерная емкость; Т1–Т5 – термopара; Г1 (2) – геттер; ТД – термодиод; КР – криорефрижератор COOL POWER 2 [10]



Рис. 7. Общий вид комплекса: СУ – система утилизации и контроля радиационной обстановки; СН – система наполнения; РК – реакционная камера

Основным элементом комплекса является тритиевая мишень (ТМ), которая входит в состав МБ и представляет собой сосуд с тонкостенными (12,5 мкм) окнами и двумя рубежами защиты. Заполнение мишени тритием осуществляется в РК, которая является третьим рубежом защиты на пути несанкционированного проникновения трития в окружающую среду.

Хранение трития активностью до 1 кКи и его транспортировка осуществляются в химически связанном состоянии на ^{238}U в источнике BS3, входящем в состав СН. Равновесное давление для тритида урана при комнатных температурах составляет не более 10^{-3} Па, а температура его разложения, при которой равновесное давление становится выше атмосферного, более чем 650 К. Конструкции источника BS3 и СН, обеспечивающие три рубежа защиты, в совокупности со свойствами тритида урана позволяют классифицировать источник BS3 как закрытый источник ионизирующего излучения.

В собранном виде ТМ и источник трития BS3 представляют собой замкнутую систему, которая позволяет удерживать тритий в жидком или газообразном виде в процессе проведения эксперимента либо переводить его в химически связанное состояние для длительного хранения в источнике.

Однако существует ряд технологических операций, нарушающих замкнутость этой системы. К ним относятся:

- перезаполнение мишени протием, дейтерием, ^3He либо ^4He , требующееся по условиям физического эксперимента;
- удаление из мишени радиогенного гелия, образовавшегося в результате распада трития в процессе длительной работы;
- разгерметизация газовых коммуникаций при смене мишени или ее демонтаже.

Перед проведением всех этих операций требуется тщательная очистка газовых коммуникаций, контактировавших с тритием. Она обеспечивается путем проведения многократных процессов «промывки», т. е. заполнения газовых коммуникаций нерадиоактивными изотопами водорода с последующим их удалением с помощью системы утилизации, в которой происходит химическое

связывание изотопов водорода металлогидридными системами. При этом в газовых коммуникациях происходит изотопный обмен между адсорбированным поверхностью тритием и нерадиоактивным изотопом водорода. «Промывки» завершаются при достижении в эвакуированном газе концентрации трития, не превышающей 10^{-6} Ки/л.

Схематично мишень изображена на рис. 8. Она представляет собой цилиндрическую полость Е, образуемую поверхностью А корпуса К и двумя мембранами М1. Подача исследуемого газа в эту полость осуществляется по трубке Т1 из системы наполнения. С целью обеспечения радиационной безопасности в устройстве мишени предусмотрен дополнительный рубеж защиты от возможного проникновения трития во внутреннюю полость реакционной камеры. Он состоит из двух полостей Б, образуемых корпусом К и мембранами М2, внутренней полости трубки Т2,

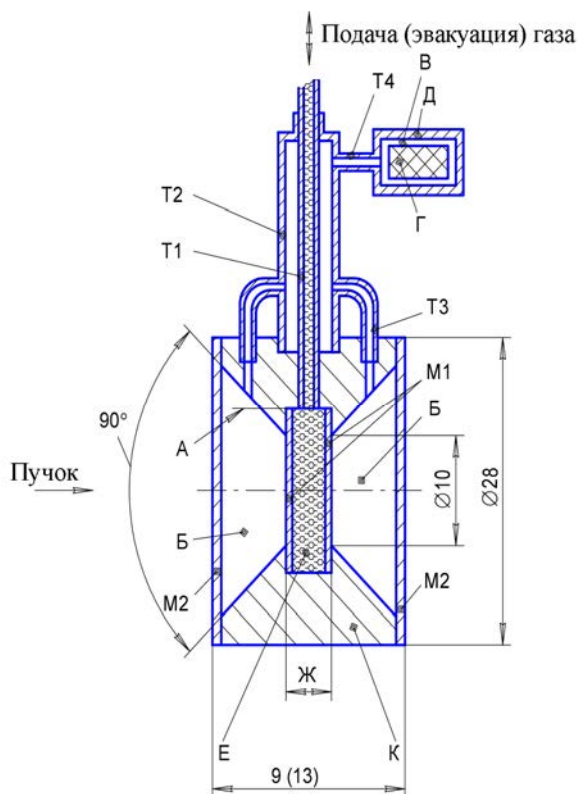


Рис. 8. Схема мишени: К – корпус; М1, М2 – мембраны; Т1–Т4 – трубки; Е, Б, В – полости; Д – обечайка; Г – геттер

герметично закрепленной к указанному корпусу и трубке Т1, а также внутренней полости В обечайки Д, служащей для размещения геттера Г. Внутренние объемы полостей Б и трубки Т2 соединены между собой магистралями из трубок Т3. Полость В с внутренней полостью трубки Т2 соединена трубкой Т4. В случае нарушения герметичности мембран М1 или трубки Т1 тритий из полости Е поступит в объем второго рубежа и будет полностью поглощен геттером Г. В качестве материала геттера используется порошкообразный Ti, подготовленный по специальной технологии. Равновесное давление трития над активированным титаном при комнатных температурах составляет не более 10^{-8} Па. Данное техническое решение позволяет предотвратить попадание трития в окружающую среду при любых нарушениях герметичности в первом рубеже защиты мишени. Количество Ti в геттере выбрано из условия возможности обеспечения полного поглощения газа, находящегося в коммуникациях мишени, СН и источнике BS3 (см. рис. 6). Мишень имеет два варианта исполнения. В первом – исследуемый изотоп водорода в полости Е (см. рис. 8) находится в жидкой фазе, во втором – в газовой. Конструкция мишеней одинакова. Различие заключается лишь в расстоянии Ж между мембранами М1 (для «жидкого» варианта – 0,4 мм; для «газового» – 4 мм). Все корпусные элементы мишени, за исключением мембран, выполнены из стали 12Х18Н10Т. Мембраны изготовлены из фольги AISI 316 («Goodfellow», Великобритания) толщиной 12,5 мкм.

Согласно расчетам, давление разрушения мембран М1 в случае подачи на них нагрузки со стороны полости Е составляет ~2 МПа. Испытания на несущую способность, проведенные на двух макетах мишеней в нормальных температурных условиях, показали, что давление разрушения соответствует расчетному значению и составляет 2 и 2,2 МПа. В реальных же условиях

эксплуатации давление газа в полости Е должно быть не более 0,1 МПа. Таким образом, обеспечивается практически 20-кратный запас по прочности мишени.

Хранение изотопов водорода осуществляется на ^{238}U в химически связанном состоянии. Для хранения протия и дейтерия используются источники BS1 и BS2, соответственно (см. рис. 6). Источники содержат по 50 г ^{238}U и могут генерировать до 7 литров газа. Тритий хранится на источнике BS3 с сорбционной емкостью 380 см³.

Конструктивно все источники выполнены в виде цилиндрических ампул с наружным электрическим нагревателем. Отличительной особенностью источника BS3 является то, что его корпус выполнен по принципу автоскрепленного сосуда с вакуумированным водородным барьером [47, 48]. Вакуумирование водородного барьера осуществляется с помощью автономного титанового геттера Г2, что позволяет поглощать диффундирующий в процессе нагрева источника тритий.

Источники BS1 и BS2 размещены в вытяжном шкафу СУ (см. рис. 7), а источник BS3 – в выносном герметичном корпусе СН, размещенной непосредственно на реакционной камере. Такая компоновка вызвана необходимостью сокращения газовых коммуникаций между мишенью и системой наполнения. Трубопроводы, соединяющие систему наполнения с системой утилизации и реакционной камерой, имеют два рубежа защиты и выполнены по принципу «труба в трубе». При этом внутренний объем наружных труб соединен с вакуумными коммуникациями системы утилизации и реакционной камеры.

Заполнение мишени изотопами водорода осуществляется следующим образом. Соответствующий источник соединяется с предварительно откакумированным измерительным объемом V системы наполнения и мишени (рис. 6), и производится его нагрев до температуры, обеспечивающей необходимое давление заданного изотопа водорода. Зависимости равновесного давления изотопов водорода над гидридом урана от температуры имеют вид: $\log P(\text{Па}) = -4590/T + 11,59$; $\log P(\text{Па}) = -4500/T + 11,56$ и $\log P(\text{Па}) = -4471/T + 11,73$ соответственно для протия, дейтерия и трития [62]. Из этих данных следует, что для заполнения мишени газом под давлением $\approx 0,1$ МПа достаточен нагрев источников до температуры 680–705 К, а в процессе хранения при комнатной температуре давление трития составляет $\approx 7 \cdot 10^{-4}$ Па.

После завершения процесса заполнения отключается нагрев соответствующего источника. При охлаждении источников происходит обратное поглощение выделенного газа из соответствующих газовых коммуникаций. Это позволяет, с одной стороны, многократно использовать один и тот же газ, с другой, что является более существенным, максимально уменьшить количество трития, входящего в систему утилизации.

После завершения сеанса включается нагреватель П (см. рис. 6), мишень отепляется и газ удаляется в систему наполнения. Время отепления мишени ~ 20 мин.

Утилизация изотопов водорода осуществляется, в основном, путем «посадки» целевого изотопа на соответствующий источник. Однако в ряде случаев требуется проведение «промывки» и вакуумирования газовых коммуникаций, контактировавших с тритием. В этом случае утилизация осуществляется абсорбированием изотопов водорода ловушками BS4 и BS5.

В системе утилизации газа применены ловушки двух типов – на основе Ti и интерметаллидного соединения $\text{Zr}(\text{V}_{0,8}\text{Cr}_{0,2})$. Ловушки на основе Ti характеризуются высокой удельной емкостью по водороду и низкими равновесными давлениями водорода над гидридом. Они эффективны в случае утилизации чистых изотопов водорода. Однако наличие таких примесей в газе, как O_2 , N_2 , CO , CO_2 , CH_4 и др., снижает сорбционную емкость титана и скорость поглощения им водорода. Поэтому в системе утилизации последовательно с титановыми применены ловушки

с интерметаллидом $Zr(V_{0,8}Cr_{0,2})$, который обладает меньшей сорбционной емкостью, но значительно менее чувствителен к примесям [63]. Ловушка BS4 содержит 300 г сплава $Zr(V_{0,8}Cr_{0,2})$, а ловушка BS5 – 250 г титана. Рабочая температура ловушек составляет 200–250 °С. Такая температура обеспечивает высокие скорости поглощения водорода, а равновесные давления изотопов водорода над соответствующими гидридами еще достаточно низкие. Это позволяет добиться практически полного поглощения изотопов водорода ловушкой.

Ловушка BS4 может работать в режиме гидридного насоса-геттера либо в «прокачном». В последнем случае эвакуируемый газ, содержащий изотопы водорода, прокачивается через ловушку BS4 с помощью безмасляного форвакуумного насоса (ФН1) (см. рис. 6). В ловушке изотопы водорода поглощаются интерметаллидом, однако различные примеси, содержащие следы трития, все же могут проходить через ловушку. При этом они фиксируются ионизационной камерой ИК1. Если показания ИК1 превышают допустимые нормы, то газовый поток направляется на ловушку BS5 для дополнительной очистки. Если даже после этого показания ИК1 превышают допустимые пределы, то происходит автоматическая блокировка вентиля VE2, открывается вентиль VE3 и установка утилизации переводится в режим рециклинга. При этом газовая смесь прокачивается через обе ловушки до тех пор, пока показания ИК1 не станут ниже допустимых норм.

С использованием данного комплекса и тритиевых мишеней на сепараторе АКУЛИНА, работающем на пучке циклотрона У-400М, проведена серия экспериментов, где тяжелые изотопы водорода 4H и 5H синтезировались в реакциях нейтронов $t+t \rightarrow p+^5H$, $t+t \rightarrow d+^4H$, $t+d \rightarrow p+^4H$ и исследовались другие каналы реакций $t+d$ и $t+t$ при энергии бомбардирующих ионов трития 56,5 МэВ. Интенсивность пучка тритонов на мишени достигала 10^8 с^{-1} . Пучок был сфокусирован на мишень в пятно диаметром менее 5 мм. Тритиевая мишень и комплекс ее газового обеспечения работали надежно, превышения допустимых норм по объемному содержанию трития в рабочей зоне и вытяжной вентиляции не зафиксировано.

Выводы

Многолетний успешный опыт эксплуатации в различных организациях экспериментальных тритиевых установок показывает, что рассмотренные в данной работе подходы и технические решения позволяют создавать радиационно-безопасное оборудование для работ с тритием на действующих физических установках с соблюдением нормативной базы РФ. При соблюдении приведенных в работе требований к конструкциям установок и необходимых мер безопасности они являются надежными и безопасными как для обслуживающего персонала, так и для окружающей среды.

Список литературы

1. Gilbert N. L., Spedding F. H. A Spectroscopic Search for H^3 in Concentrated H^2 // *Phys. Rev.* 1933. Vol. 43. P. 964.
2. Oliphant M. L. E., Harteck P., Rutherford E. Transmutation Effects Observed with Heavy Hydrogen // *Nature*. 1934. Vol. 133. P. 413.
3. Libby W. F. Atmospheric Helium Three and Radiocarbon from Cosmic Radiation // *Phys. Rev.* 1946. Vol. 69. P. 671.
4. Беловодский Л. К., Гаевой В. К., Гришмановский В. Н. Тритий. М.: Энергоатомиздат, 1985.
5. Läser R. Tritium and Helium-3 in Metals. Springer-Verlag Heidelberg, 1989.
6. DOE Handbook. Tritium Handling and Safe Storage. DOE-HDBK-1129-2008.
7. Физические величины: Справочник / Под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991.
8. Нормы радиационной безопасности НРБ-99/2009. Санитарные правила и нормативы Сан-ПиН 2.6.1.2523-09.
9. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010). Санитарные правила и нормативы СП 2.6.1.2612-10.
10. Радиационная безопасность при работе с тритием и его соединениями (СП РБ-РТС-04). Санитарные правила СП 2.6.1. 05-04.
11. Nagamine K., Matsuzaki T., Ishida K. et al. New RIKEN-RAL pulsed μCF facility and X-ray studies on DT- μCF // *Hyperfine Interactions*. 1996. Vol. 101/102. P. 521–538.
12. Юхимчук А. А., Лобанов В. Н. Система тритиевого обеспечения. Изотопы водорода. Фундаментальные и прикладные исследования: Сб. статей / Под ред. А. А. Юхимчука. Саров, 2009. С. 57–62; Yukhimchuk A. A., Lobanov V. N. Tritium handling. *Hyperfine Interaction*. 1996. Vol. 101/102. P. 661–668.
13. Yukhimchuk A. A., Lobanov V. N. The approach to the design of a high-pressure tritium facility // *J. Moscow Phys. Soc.* 1999. Vol. 9, N. 4. P. 269–280.
14. Caffrey A. J. et al. Muon-Catalyzed Fusion. 100 ksi Target Auxiliary Systems Design Philosophy: Report, INEL & LANL, 1990.
15. Caffrey A. J., Anderson A. N., van Siclen C. De W. et al. Muon-catalyzed fusion experiments at LAMPF // *Muon Catalyzed Fusion*. 1987. Vol. 1. P. 53–66.
16. Watts K. D. // *Proc. 10th Symposium on Fusion Engineering (IEEE/ANS), Philadelphia, 1983.*
17. Zmeskal J. J., Ackerbauer P., Sherman R. H. et al. A tritium target system for μCF // *Muon Catalyzed Fusion*. 1990/1991. Vol. 15/6. P. 379–385.
18. Carstens D. H. W., David W. R. In. *Proc. Miami Int. Symposium on Metal Hydrogen Systems*, 1981. P. 667–674.

19. Golubkov A. N., Yukhimchuk A. A. Sources of high-pressure hydrogen isotope gases // *J. Moscow Phys. Soc.* 1999. Vol. 9, N. 4. P. 223–230.
20. Golubkov A. N., Kononenko A. A., Yukhimchuk A. A. Vanadium hydride-base thermodesorption sources of hydrogen isotopes // *Fusion Science and Technology.* 2005. Vol. 48. P. 527–533.
21. Proc. of the RIKEN Symposium on Muon Science, 1993. WAKO, RIKEN. P. 199.
22. Fagaly R. L. High pressure tritium fill system for the OMEGA ICF laser. P.O.Box 85608, San Diego, California 92186-9784 USA.
23. Yukhimchuk A. A., Gaevoy V. K. Study of Hydrogen Isotopes Permeation through some Construction Materials // *J. of Nuclear Materials.* 1996. Vol. 233–237. P. 1193–1197.
24. Baranowski B. Ber. Bunsenges // *Physik. Chem.* 1972. Vol. 76. P. 714.
25. Перевозчиков В. В., Юхимчук А. А., Ганчук Н. С. и др. Тритиевая мишень высокого давления // *ПТЭ.* 1999. № 1. С. 28–33.
26. Пат. 2163837 С2. Способ получения водорода высокой плотности / А. А. Юхимчук, В. В. Перевозчиков, В. И. Тихонов и др. // *Бюл.* № 7, 10.03.2001.
27. Пат. 2174043. Способ получения высокой плотности изотопов водорода / А. А. Юхимчук, В. И. Тихонов, Д. Л. Демин и др. // *Бюл.* № 27, 27.09.2001.
28. Водород, свойства, получение, хранение, транспортирование, применение: Справочник. М.: Химия, 1989. С. 477–478.
29. Андреев Б. М., Перевезенцев А. Н. Получение высокочистых инертных газов и водорода // *Высокочистые вещества.* 1990. Вып. 2. P. 23–39.
30. Клевцов В. Г., Лобанов В. Н., Хабаров Ю. А., Юхимчук А. А. Диффузионная очистка изотопов водорода палладиевыми фильтрами // *Материаловедение.* 2002. № 5. С. 53–56.
31. Юхимчук А. А., Апасов В. А., Виноградов Ю. И. и др. Комплекс газового обеспечения экспериментов по мюонному катализу ядерных реакций синтеза // *ПТЭ.* 1999. № 6. С. 17–23.
32. Purer A., Karlan R. L. Chromatographic separation of the nuclear spin isomers of hydrogen and deuterium below 60K // *J. Chromatogr. Sci.* 1971. Vol. 9. N 1.
33. Фильчагин С. В., Бучирин А. В., Виноградов Ю. И. и др. Автоматизация радиохроматографа РХТ-3 для изотопного и молекулярного анализа водородосодержащих газовых смесей // *ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез.* 2008. Вып. 2. С. 93–96.
34. Jones S. E., Shelton D. S., Turley R. S. et al. Raman spectrographic system for quantitative analysis of isotopic hydrogen mixtures for muon catalysis experiments // *Hyperfine Interactions.* 1996. Vol. 101/102. P. 695–698.
35. Ganchuk N. S., Golubkov F. N., Kreknin D. A. et al. Calculation and Method for Experimental Evaluation of Molecular Composition in three Hydrogen Isotopes // *J. Moscow Phys. Soc.* 1999. Vol. 9, N. 4. P. 281–288.

36. Okuno K., Uda' T., O'Hira S and Naruse Y. et al. Development of in-situ gas analyzer for hydrogen isotopes in fusion fuel gas processing // *Journal of Science and Technology*. 1991. Vol. 28, N 6. P. 509–516.

37. Adar F., Geiger R., Noonan. J. Raman spectroscopy for process/quality control // *Applied spectroscopy reviews*. 1997. Vol. 32, N 1–2. P. 45–101.

38. Schlösser M., Pakari O., Rupp S. et al. How to make Raman-inactive helium visible in Raman spectra of tritium-helium gas mixtures // *Fusion Science and Technology*. 2015. Vol. 67, N 3. P. 559–562.

39. Godot A., Coindet G., Hubinois J. C. Analysis of gases by Raman spectroscopy: determination of isotopic composition of hydrogen mixtures (H_2 , D_2 and T_2) // *Ibid*. 2011. Vol. 60, N 3. P. 998–1001.

40. Tikhonov V. V., Yukhimchuk A. A., Musyayev R. K., Gurkin A. I. Investigation of hydrogen isotope exchange reaction rate in mixed gas (H_2 and D_2) at pressure up to 200 MPa using Raman spectroscopy // *Fusion Science and Technology*. 2015. Vol. 67. P. 612–614.

41. Гришечкин С. К., Лобанов В. Н., Юхимчук А. А. Обеспечение безопасности эксплуатации сосудов высокого давления для работы с тритием на этапе их разработки // *Сб. докл. «IHISM'04»*. Саров, 2005. С. 372–380.

42. Bazunov A. V., Boitsov I. E., Grishechkin S. K. et al. Physical and mechanical properties of structural materials in gaseous media containing hydrogen isotopes // *J. Moscow Phys. Soc.* 1999. Vol. 9. P. 237–243.

43. Хабаров Ю. А., Базунов А. В., Бойцов И. Е. и др. Исследование физико-механических свойств конструкционных материалов в газовых средах, содержащих изотопы водорода // *Сб. докл. «IHISM'01»*. Саров, 2002. С. 112–118.

44. Бойцов И. Е., Гришечкин С. К., Малков И. Л. и др. Исследование физико-механических свойств жаропрочных никелевых сплавов ЭП741НП и ЭП99-ИД в среде газообразного водорода: Сб. статей / Под ред. А. А. Юхимчука. Саров, 2009. С. 312–323.

45. Maksimkin I. P., Yukhimchuk A. A., Boitsov I. Ye. et al. Mechanical properties and permeability of hydrogen isotopes through CrNi35WTiAl alloy, containing radiogenic helium // *Fusion Science and Technology*. 2015. Vol. 67. P. 459–462.

46. Быстрыцкий В. М., Возняк Я., Грановский В. Б. и др. Исследование проникновения водорода и дейтерия через двойную оболочку (Au + сплав ЭИ698) при высоких температурах и давлениях // *Препринт ОИЯИ Р13-86-162*. Дубна, 1986.

47. Ganchuk N. S., Grishechkin S. K., Kononenko A. A. et al. A radiation-safe container for D-T filling of laser target // *J. Moscow Phys. Soc.* 1999. Vol. 9. P. 289–294.

48. Пат. 2136064С1. Сосуд для хранения изотопов водорода / А. А. Юхимчук, В. И. Тихонов, С. К. Гришечкин и др. // *Бюл. № 24*, 27.08.99.

49. Demin D. L., Dzheleпов V. P., Grafov N. N. et al. Solid Deuterium Target // *Hyperfine Interactions*. 1996. Vol. 101/102. P. 583–589.

50. Demin D. L., Dzheleпов V. P., Filchenkov V. V. et al. Novel experimental method for the investigation of multiple muon catalysis processes in an H/D/T mixture // *Hyperfine Interactions*. 1996. Vol. 101/102. P. 591–597.

51. Графов Н. Н., Гребинник В. Г., Демин Д. Л. и др. Жидкотритиевая мишень: Препринт ОИЯИ Р13-97-243. Дубна, 1997.

52. Перевозчиков В. В., Юхимчук А. А., Виноградов Ю. И. и др. Дейтериевая мишень высокого давления // *ПТЭ*. 2002. Вып. 4. С. 155–160.

53. Юхимчук А. А., Тумкин Д. П., Бойцов И. Е. и др. Криогенная тритиевая мишень / Сб. докл. «IHISM'04». Саров, 2005. С. 393–400 // Yukhimchuk A. A., Tumkin D. P., Boitsov I. E. et al. Cryogenic tritium target // *Fusion Science and Technology*. 2005. Vol. 48. С. 294–297.

54. Перевозчиков В. В., Юхимчук А. А., Виноградов Ю. И. и др. Мишени высокого давления для исследования процессов мюонного катализа ядерных реакций синтеза // Сб. докл. Второго международного семинара «Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами. IHISM'04». Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2005. С. 381–392.

55. Perevozchikov V. V., Yukhimchuk A. A., Vinogradov Yu. I. et al. High-pressure tritium targets for research in muon-catalyzed fusion // *Fusion Science and Technology*, 2005. Vol. 48(1). P. 310–313.

56. Yukhimchuk A. A., Il'kaev R. I. Status of efforts on fundamental and applied studies with tritium at RFNC-VNIIEF // *Ibid*. 2015. Vol. 67. P. 666–670.

57. Bogdanova L. N., Demin D. L., Duginov V. N. et al. Experimental Study of Nuclear Fusion Reactions in a p μ System // *Physics of Particles and Nuclei Letters*. 2012. Vol. 9, N 8. P. 605–614.

58. Rodin A. M., Stepanov S. V., Bogdanov D. D. et al. Status of ACCULINNA beam line // *Nucl. Instr. and Meth. B*. 2003. Vol. 204. P. 114–118.

59. Yukhimchuk A. A., Angilopov V. V., Apasov V. A. et al. Gas feeding system for the U-400M cyclotron ion source supplying with hydrogen isotopes // *Fusion Science and Technology*. 2005. Vol. 48. P. 704–707.

60. Yukhimchuk A. A., Perevozchikov V. V., Apasov V. A. et al. Tritium target for research in exotic neutron-excess nuclei // *Nucl. Instr. and Meth. A*. 2003. Vol. 513, N 3. P. 439–447.

61. Юхимчук А. А., Перевозчиков В. В., Апасов В. А. и др. Тритиевая мишень для исследования экзотических нейтронноизбыточных ядер и комплекс ее газового обеспечения // *ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов*. 2002. Вып. 1/2. С. 183–190.

62. Маккей К. Водородные соединения металлов. М.: Мир, 1968.

63. Перевезенцев А. Н., Андреев Б. М., Селиваненко И. Л. Глубокая очистка гелия с применением интерметаллических соединений на основе циркония // *Высокочистые вещества*. 1990. № 1. С. 122–127.

Research and Development Facilities for Safety Handling with Tritium and its Compounds

A. A. Yukhimchuk

Approaches are provided for the development of research experimental facilities for safe treatment of tritium and its compounds intended for use in large physical facilities. The existing legal regulatory base is considered in regard to the development of tritium facilities, as well as technical decisions for the development of the facility elements and examples of the elaborated approach implementations.

УДК 621.039.53

Исполнительный механизм аварийной защиты реактора с автономным источником энергии на основе пиротехнического газогенератора

**Д. А. Горькаев, М. И. Крылова,
И. А. Никитин**

Описана конструкция исполнительного механизма с автономным источником энергии на основе пиротехнического газогенератора, предназначенного для прекращения цепной ядерной реакции при нарушении нормальной работы реактора. Рассмотрены особенности конструкции газогенератора и газогенерирующие пиротехнические составы на основе азида натрия. Приведены результаты испытаний образцов автономных источников энергии и экспериментальные данные по исследованию макета исполнительного механизма аварийной защиты с газогенератором. Предложены алгоритм и расчетная модель определения расходной характеристики газогенератора. Проведены расчеты динамических характеристик макета исполнительного механизма. Результаты свидетельствуют, что в исполнительном механизме аварийной защиты ядерного реактора в качестве эффективного источника энергии можно использовать пиротехнический газогенератор.

Введение

В настоящее время ядерные реакторы нашли широкое применение в различных сферах науки и техники. Независимо от назначения ядерного реактора, аварийная защита (АЗ) представляет собой структурную часть системы безопасности, которая посредством системы управления и защиты (СУЗ) обеспечивает быстрый ввод рабочим органом (РО) или группой РО отрицательной реактивности в активную зону для прекращения цепной ядерной реакции при нарушении нормальной работы установки.

Традиционный подход построения АЗ реактора основан на использовании пассивного принципа, когда срабатывание АЗ производится в момент наступления аварийного события. Конструкция исполнительного механизма (ИМ) АЗ предусматривает, как правило, независимый источник энергии (например, потенциальная энергия силы тяжести), который воздействует на подвижную часть РО в сторону уменьшения реактивности активной зоны [1]. Проектное быстрое действие ИМ АЗ должно обеспечивать надежную остановку реактора для всех возможных аварийных ситуаций.

В настоящее время совершенствование и развитие систем АЗ реактора связано с внедрением дополнительных устройств, работа которых основана на нетрадиционных принципах. К таким системам относится, например, прямодействующая аварийная защита (ПАЗ). Отличие таких систем от традиционной АЗ состоит в том, что устройство ответственное за срабатывание АЗ, расположено внутри ИМ. В работе [2] приведено значительное количество технических решений по ПАЗ и их конструктивные схемы. На исследовательских ядерных реакторах (ИЯР) также иногда используют нетрадиционные способы остановки реактора. К ним можно отнести АЗ импульсного реактора БИР-2М на мгновенных нейтронах деления [3], ускоренный вывод блока безопасности посредством теплового удара в топливных элементах на реакторах БАРС-2 и БАРС-3, а также быстродействующую защиту с применением пневматического ускорителя на реакторе БАРС-5 [4] и стенде критических сборок ИКАР-С [5].

В большинстве случаев дополнительная система является последней ступенью в АЗ, поэтому для обеспечения эффективности к ней предъявляют повышенные требования по надежности и быстродействию срабатывания. Обычно конструктивные решения в таких системах рассчитаны на одноразовое действие.

Особое место среди реакторных установок занимают ядерные реакторы на быстрых нейтронах, в которых небольшие размеры активной зоны достигаются путем повышения в топливе процентного содержания изотопа урана-235. Реакторы такого типа находят применение:

- в качестве исследовательских импульсных реакторов для получения контролируемых и повторяемых вспышек деления атомных ядер на запаздывающих и мгновенных нейтронах [6];
- в качестве ядерных энергетических установок (ЯЭУ), используемых на атомных надводных и подводных кораблях, а также в составе космических аппаратов [7]. В первом случае – силовая установка транспортного средства; во втором – электрический генератор на основе термоэмиссионного преобразователя, где рабочим телом являются радиоизотопы (стронций-90, цезий-137 и др.);
- в перспективных проектах в качестве ядерных двигателей для самолетов и ракет различного назначения (ЯРД) [8, 9].

Одним из важных моментов при эксплуатации ЯЭУ и ЯРД является возможность эффективного использования в ИМ АЗ потенциальной энергии силы тяжести. По мере увеличения угла наклона реактора относительно поверхности земли эффективность такого способа АЗ снижается, а в условиях космического базирования такой способ неприменим.

Учитывая данные обстоятельства, такие ИМ АЗ оснащают дополнительным источником потенциальной энергии, например, упругим элементом (пружиной сжатия) [1], который независимо от пространственного положения ядерного реактора обеспечивает срабатывание АЗ. К недостаткам такого источника энергии можно отнести следующее:

- наличие механизмов взвода, удержания и срабатывания;
- уменьшение силы по мере раскрытия пружины;
- существенное ухудшение массогабаритных характеристик при увеличении силы и рабочего хода;
- негативное влияние температуры на механические свойства материала пружины и др.

Чтобы исключить перечисленные недостатки, следует рассмотреть другие источники энергии, использование которых в ИМ АЗ может обеспечить высокую надежность срабатывания, быстродействие и способность механизма развивать значительное тяговое усилие. Опыт разработки и эксплуатации импульсных ядерных реакторов [6], в которых для генерации импульсов делений применяются пневматические ИМ, показывает, что подобные ИМ можно также использовать в системах АЗ других ядерных установок.

В настоящей работе рассматривается быстродействующая пассивная АЗ ядерных реакторов на основе одного из вариантов пневматического механизма [10], в котором источником энергии является пиротехнический газогенератор.

Подходы проектирования пневматического привода исполнительного механизма аварийной защиты

Характерной особенностью пневматических механизмов являются надежность, реализация высоких скоростей перемещения РО, передача значительных тяговых усилий на перемещение подвижных частей независимо от их пространственного положения. Важным достоинством такого механизма является способность сохранять работоспособность при значительном уровне радиационного воздействия, а также в условиях как высокой, так и низкой температуры.

В общем случае пневматический привод ИМ АЗ представляет собой устройство, в котором источник энергии связан с пневматическим цилиндром трубопроводом, а поршень – через шток с РО. Конструктивная схема пневматического привода ИМ АЗ приведена на рис. 1. Механизм состоит из термодинамической и механической подсистем.

На рис. 1 показано, что в подвижных соединениях пневматического цилиндра отсутствуют уплотняющие элементы. Такое техническое решение обеспечивает работоспособность механизма

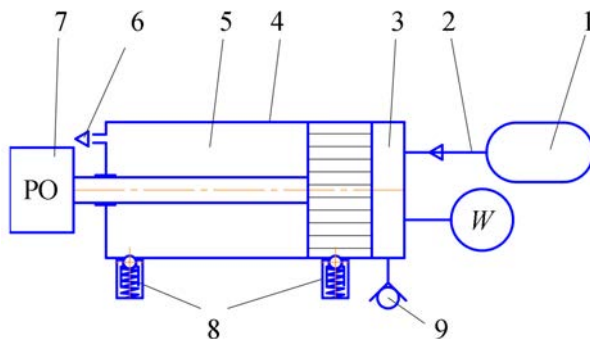


Рис. 1. Конструктивная схема пневматического привода ИМ АЗ: 1 – источник энергии; 2 – трубопровод; 3 – рабочая полость цилиндра; 4 – пневмоцилиндр; 5 – выхлопная полость цилиндра; 6 – дроссель (выход в атмосферу); 7 – подвижная часть; 8 – фиксатор; 9 – клапан предохранительный; W – датчик давления

в условиях низкой и высокой температур. Утечки рабочей среды через подвижные сопряжения можно снизить за счет увеличения гидравлического сопротивления в зазоре и быстрого срабатывания механизма.

В приводе ИМ АЗ (см. рис. 1) установлены фиксаторы 8, которые исключают перемещение подвижной части независимо от положения механизма в пространстве. Время начала перемещения РО зависит от быстродействия срабатывания источника энергии и скорости изменения давления в рабочей полости цилиндра (тяговое усилие), направленного на преодоление сил инерции подвижной части и сопротивления, оказываемого фиксатором.

В пневматическом приводе в качестве источника энергии можно использовать ресивер, небольшой объем газа под давлением или автономное устройство, которое вырабатывает газ (газогенератор). Конструктивная схема привода с ресивером используется для многократного применения. Ресивер наполняется газом от баллонной системы, подача в пневмоцилиндр осуществляется по трубопроводу через электропневмоклапан (ЭПК). Схема с газогенератором предназначена для одноразового срабатывания, выделяемый газ непосредственно по трубопроводу поступает в пневмоцилиндр.

Тип и конструкция источника энергии для пневматического привода ИМ выбираются из условий эксплуатации ядерного реактора и назначения РО или группы РО.

При использовании газогенератора в приводе ИМ необходимо устанавливать предохранительный клапан 9, предназначенный для сброса избыточного давления из рабочей полости цилиндра 3 в случае невозможности перемещения подвижной части, например, при заклинивании. Максимальное тяговое усилие, действующее на поршень, определяется прочностью наиболее слабого элемента или узла в конструкции подвижной части.

В конечной фазе работы пневматический привод должен обеспечивать поджатие подвижной части в крайнем положении, величина усилия зависит от давления газа в рабочей полости 3.

Особенности конструкции газогенератора

Газогенератор представляет собой энергетическое устройство, вырабатывающее газ в результате протекания химических реакций. Разновидностью газогенераторов являются пиротехнические, в которых газ образуется в результате горения пиротехнического состава (ПТС).

Пиротехнические газогенераторы применяются в тех случаях, когда необходимо обеспечить высокую надежность, быстрое действие срабатывания устройства, небольшие массовые и габаритные параметры, длительные сроки хранения и эксплуатации, в течение которых не требуется дополнительное обслуживание.

Основными областями применения пиротехнических газогенераторов являются:

- устройства пассивной безопасности пассажиров автотранспорта;
- устройства вытеснения жидкостей;
- газодинамические лазеры;
- устройства для создания дыхательных смесей и инертной атмосферы;
- системы пожаротушения;
- аварийное пневматическое оборудование.

Исходя из условий эксплуатации ИМ АЗ реактора, в качестве рабочего газа предпочтительно использовать азот. Этот газ пожаровзрывобезопасен, физиологически инертен, имеет низкую температуру конденсации.

Большинство азотогенерирующих ПТС в качестве горючего и соединения – носителя азота – содержат азид натрия [11]. К важным достоинствам азидов натрия можно отнести то, что они, в отличие от других азидов (щелочных или щелочно-земельных металлов), устойчивы, мало чувствительны к трению и удару [12]. При термическом распаде азидов натрия в газовую фазу переходит только азот. Кроме того, азид натрия производится в промышленных масштабах, чем обуславливается его невысокая стоимость.

Используя различные окислители и варьируя соотношения компонентов, на базе азидов натрия можно реализовать газогенерирующий ПТС с температурой горения 500–2700 °С, удельным газовыделением 200–465 см³/г и скоростью послыонного горения 1–300 мм/с [13].

Опыт создания ГГ показал, что для пневматического ИМ реактора наиболее подходящими являются ПТС на основе азидов натрия и оксидов железа (III). Такие составы имеют невысокую температуру горения 500–1000 °С, температуру воспламенения 280–400 °С, скорость их послыонного горения составляет от 5 до 30 мм/с, энтальпия сгорания 1,2–1,6 кДж/г, удельное газосодержание 300–370 см³/г. При горении ПТС выделяется практически чистый азот, в продуктах горения отсутствуют вода и легкоконденсирующиеся вещества, шлак после сгорания сохраняет форму исходного заряда [14–16].

Горение ПТС на основе азидата натрия с оксидом железа(III) может быть описано [17] следующими химическими уравнениями:

- 1) $2\text{NaN}_3 \rightarrow 2\text{Na} + 3\text{N}_2$;
- 2) $6\text{Na} + \text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow 3\text{Na}_2\text{O} + 2\text{Fe}$;
- 3) $\text{Na}_2\text{O} + \text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow 2\text{NaFeO}_2$.

Расчетно-экспериментальным путем подобран ПТС для ГГ. Массовая доля азидата натрия в нем составляет 68 %, оксида железа (III) – 32 %.

Конструктивная схема пиротехнического ГГ [18] представлена на рис. 2.

Газогенератор (см. рис. 2) представляет собой цилиндрическую сборку, в корпусе 2 которой размещен газогенерирующий заряд 1 с осесимметричным зазором 3. Заряд закреплен гайкой 5.

Между газогенерирующим зарядом (ГГЗ) и гайкой 5 установлен фильтрующий элемент 6. С одного торца сборки ГГ расположено инициирующее устройство 7, с другого – канал вывода газа 4 в гайке 5.

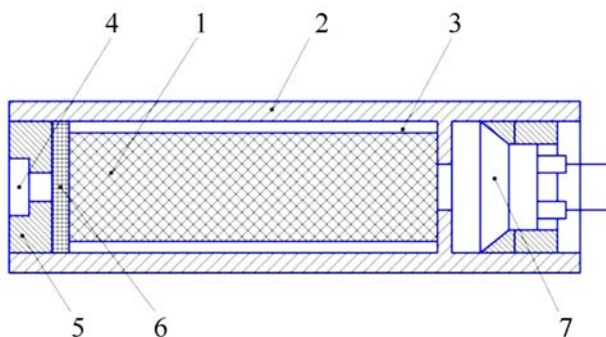


Рис. 2. Конструктивная схема пиротехнического газогенератора: 1 – газогенерирующий заряд; 2 – корпус; 3 – зазор; 4 – канал вывода газа; 5 – гайка; 6 – фильтрующий элемент; 7 – инициирующее устройство

При подаче электрического импульса на инициирующее устройство 7 локальный тепловой импульс через воздушный зазор поджигает торцевую поверхность ГГЗ. Выделившийся газ, протекая по зазору 3 к каналу вывода газа 4, поджигает внешнюю цилиндрическую поверхность заряда. Фильтрующий элемент 6 охлаждает и очищает газ. Процесс термохимической реакции самораспространяется за счет собственной энергии до полного сгорания газогенерирующего заряда 1.

В конструкции газогенератора использована схема дегрессивного горения заряда,

которая обеспечивает высокую начальную скорость газогенерации и быстродействие срабатывания ИМ АЗ.

Представленную конструкцию газогенератора характеризуют:

- автономность;
- малые габариты;
- высокая степень очистки генерируемого газа от конденсированных продуктов горения газогенерирующего ПТС;
- высокое быстродействие (время срабатывания менее 1 с);
- высокая надежность (не менее 0,9999 при доверительной вероятности 0,9);
- стабильные параметры срабатывания (среднее квадратическое отклонение времени срабатывания в диапазоне начальных температур от минус 50 °С до плюс 50 °С не превышает 5 %);
- генерация газа с температурой не более 50 °С от начальной температуры устройства;
- гарантийный срок не менее 25 лет.

Параметры газогенератора определялись при срабатывании устройства на приемник постоянного объема. В процессе исследований определялось время начала поступления газа в приемник и достижения максимального давления, проводилась оценка состояния конденсированных продуктов горения.

Давление газа в полости приемника измерялось датчиком DMP 333, электрический сигнал с которого регистрировался осциллографом Tektronix TDS3014B. Суммарная погрешность изме-

рения давления газа составляла $\pm 1,0\%$. Точность измерения времени срабатывания газогенератора составляла 2 мс.

Параметры исследуемых газогенераторов приведены в таблице.

Параметры газогенераторов

Наименование	ГГ-1 (рис. 3)	ГГ-2	ГГ-3 (рис. 3)	ГГ-4 (рис. 4)
Закладка пиротехнического состава по азоту, л*	3,5	2,4	3,7	28,9
Относительная плотность газогенерирующего заряда**	0,75	0,8	0,8	0,8
Объем приемника, л	0,085	0,220	0,085	0,306
Время начала поступления газа в приемник, мс	39	21	32	13
Время срабатывания газогенератора, мс	300	360	340	570
Максимальное давление в приемнике, МПа	6,23	1,25	6,45	23,2
Размеры газогенерирующего заряда (диаметр×высота), мм	12×50	12×30	12×50	50×130
Масса газогенератора, кг	0,2	0,15	0,2	1,2

Примечание: * – объем азота при температуре 0 °С и давлении 101,3 кПа (760 мм рт. ст.);

** – отношение фактической плотности ГГЗ к максимальной плотности.

На рис. 3 представлены экспериментальные зависимости изменения давления от времени в приемнике объемом 0,085 л при срабатывании газогенератора с различной относительной плотностью ГГЗ.

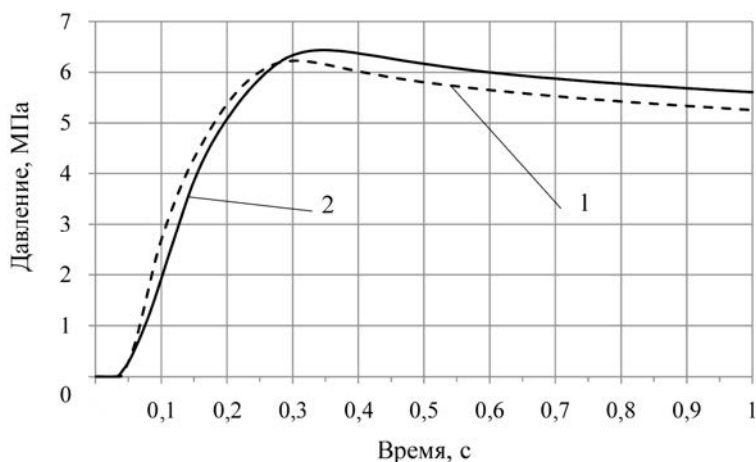


Рис. 3. Экспериментальная зависимость изменения давления от времени в приемнике объемом 0,085 л при срабатывании газогенератора с различной относительной плотностью ГГЗ: 1 – ГГ-1 (0,75); 2 – ГГ-3 (0,8)

На рис. 4 представлена экспериментальная зависимость изменения давления от времени в приемнике объемом 0,306 л при срабатывании ГГ-4.

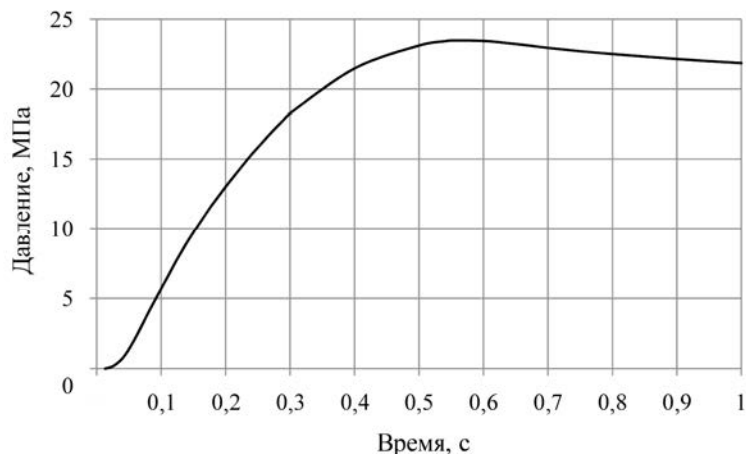


Рис. 4. Экспериментальная зависимость изменения давления от времени в приемнике объемом 0,306 л при срабатывании ГГ-4

Особенности расчета пневматического привода исполнительного механизма аварийной защиты с пиротехническим газогенератором

Испытания газогенератора проводились с использованием макета пневматического ИМ АЗ. ИМ перемещал имитатор РО массой 16 кг в горизонтальном направлении на расстояние 220 мм. Диаметр пневмоцилиндра – 0,05 м (площадь поршня – $1,96 \cdot 10^{-3} \text{ м}^2$). Газовая магистраль пневматической системы представляла собой трубопровод с внутренним диаметром 6 мм и длиной 2 м. В стартовом положении подвижная часть удерживалась фиксатором, усилие отрыва с которого составляло ~900 Н. Торможение подвижной части осуществлялось с помощью пневматического демпфера (выхлопная полость цилиндра). В конечном положении подвижная часть фиксировалась на устройстве захвата, в пределах которого допускалась незначительная осцилляция.

Экспериментальные зависимости изменения давления от времени в рабочей полости цилиндра макета ИМ АЗ при срабатывании газогенератора с различной закладкой ПТС по азоту представлены на рис. 5. Давление газа в рабочей полости цилиндра измерялось датчиком DMP 331, электрический сигнал с которого регистрировался осциллографом Tektronix TDS3052B.

Передний фронт графика на рис. 5 соответствует наполнению газом буферного объема цилиндра, задний фронт – перемещению подвижной части механизма, движение РО из одного крайнего положения в другое. Дальнейший процесс характеризует уравнивание давления в пневматической системе.

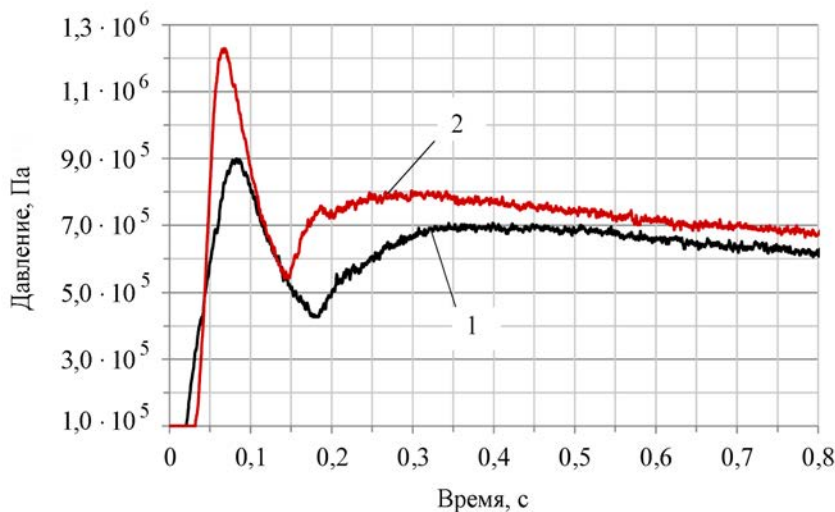


Рис. 5. Экспериментальная зависимость изменения давления от времени в рабочей полости цилиндра макета ИМ АЗ при срабатывании газогенератора с различной закладкой пиротехнического состава по азоту: 1 – 2,4 л (ГГ-2); 2 – 3,7 л (ГГ-3)

Результаты испытаний ИМ АЗ с автономным источником энергии показали, что время перемещения подвижной части составляет ~ 100 мс, а усилие поджатия ее в конечном положении – от 1200 до 1300 Н в течение ~ 1 с.

В работе [19] приведена расчетная модель пневматического механизма, в котором источником энергии является ресивер с газом (воздух) под давлением.

Выше показано, что режим горения ГГЗ определяется особенностью конструкции конкретного газогенератора. Поэтому в расчете пневматического механизма с автономным источником энергии для учета влияния газогенератора предлагается в качестве исходного параметра использовать экспериментальную зависимость изменения давления от времени $p(t)$ при срабатывании газогенератора на приемник, полагая, что для данного устройства эта характеристика постоянна. Зависимость $p(t)$ позволяет определить функцию наработки массы газа $W(t)$ и скорость выделения газа $\delta W/\delta t$. Последний параметр можно рассматривать как массовый расход газа некоего формализованного источника энергии (аккумулятора), который поступает в рабочую полость пневматического цилиндра (см. рис. 1).

При этом приняты следующие допущения:

- газ является идеальным;
- процесс течения газа в полость приемника адиабатический, теплообмен отсутствует;
- изменение скорости горения состава на основе азидата натрия от внешнего давления незначительное [11];
- температура генерируемого газа 50 °С;
- конструктивные размеры и физико-механические свойства материала соединительного трубопровода в схемах газогенератор–приемник, газогенератор–пневмоцилиндр близки.

На рис. 6 показана часть одной из зависимостей рис. 3 (кривая 2).

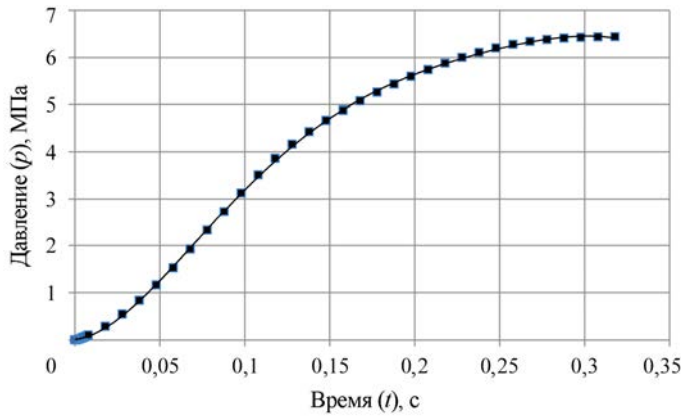


Рис. 6. Экспериментальные данные «■» изменения давления от времени в приемнике при срабатывании ГГ-3

Зависимость давления от времени, приведенную на рис. 6, можно описать функцией

$$p(t) = -13751t^5 + 12970t^4 - 4495,5t^3 + 610,75t^2 + 4,0612t + 0,011. \quad (1)$$

Для идеального газа зависимость изменения массы азота $W(t)$ от времени можно определить из уравнения

$$p(t) = \rho(t)RT = \frac{W(t)}{V}RT, \quad (2)$$

где ρ – плотность, V – объем приемника, R – газовая постоянная, T – температура газа.

Зависимости изменения массы газа $W(t)$ и скорости выделения газа $\delta W/\delta t$ от времени в приемнике при срабатывании ГГ-3 приведены на рис. 7.

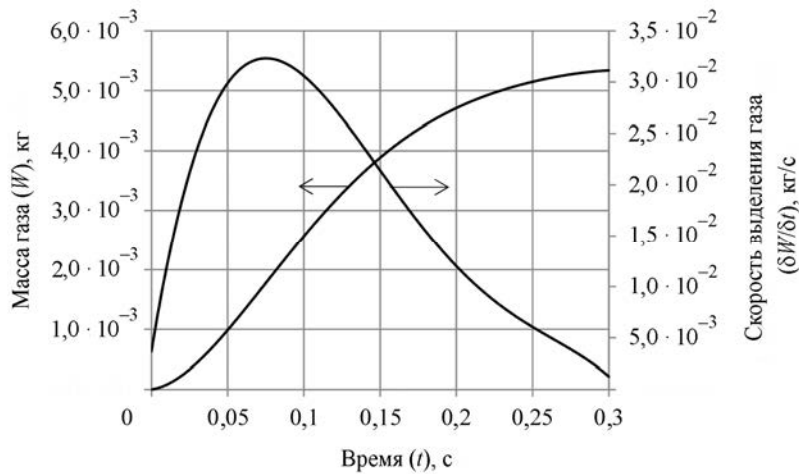


Рис. 7. Зависимости изменения массы газа и скорости выделения газа от времени в приемнике при срабатывании ГГ-3

Расчет динамических характеристик макета ИМ АЗ, оснащенного ГГ-3, проводился с использованием математической модели, представленной в работе [19], при этом массовый расход поступления газа в рабочую полость цилиндра описывался функцией $\delta W/\delta t$. Результат расчета изменения давления от времени в рабочей полости пневматического цилиндра ИМ АЗ приведен на рис. 8 (кривая 2). Кривая 1 на рисунке представляет собой экспериментальные данные (см. кривую 2 на рис. 5).

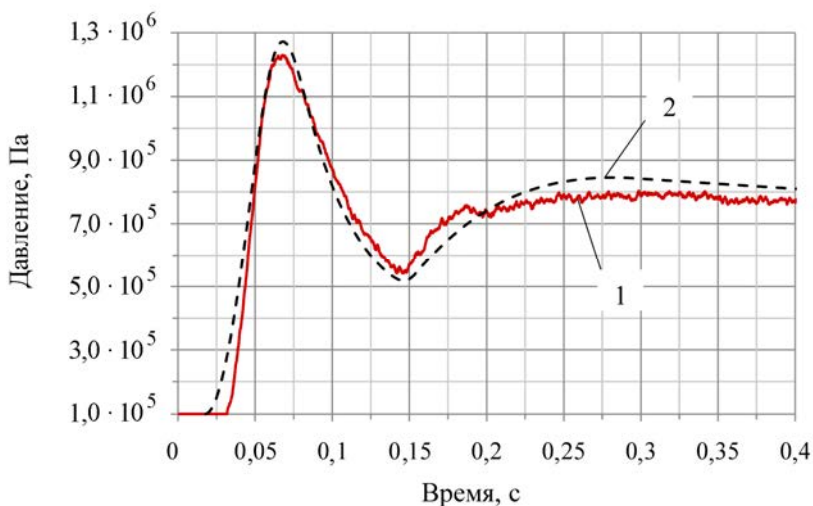


Рис. 8. Зависимость изменения давления от времени в рабочей полости пневматического цилиндра ИМ АЗ при срабатывании ГГ-3: 1 – эксперимент; 2 – расчет

Из приведенных на рис. 8 результатов видно хорошее согласие экспериментальных и расчетных данных в описании характера термодинамического процесса и времени перемещения подвижной части, расхождение значений давления в точках экстремума составляет не более 7 %.

Расчетные характеристики работы термодинамической и механической подсистем макета ИМ АЗ с ГГ-3 представлены на рис. 9.

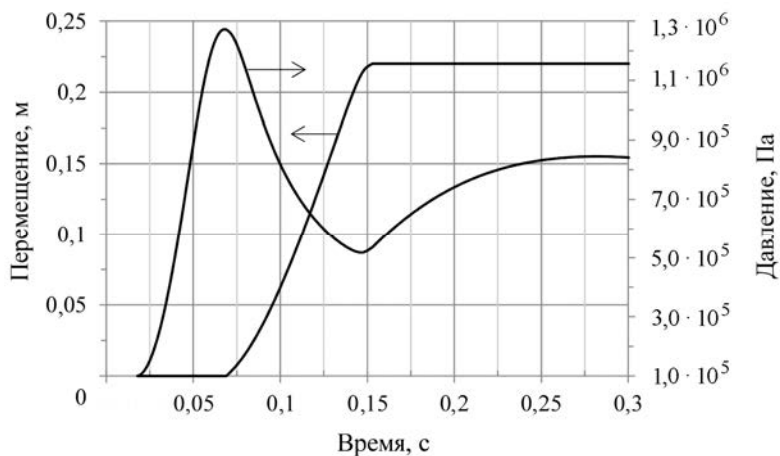


Рис. 9. Расчетные зависимости перемещения и давления от времени при срабатывании макета ИМ АЗ с ГГ-3

Таким образом, с помощью предложенной модели можно проводить расчеты по определению оптимальных параметров конструкции и динамических характеристик ИМ с автономным источником энергии.

Цель разработки ГГ-4 состояла в создании источника энергии с коротким временем срабатывания и высокой скоростью выделения газа. Особенность данного генератора состоит в конструкции ГГЗ. Воспламенение поверхности горения основного заряда проводилось посредством

дополнительного заряда, выполненного из пиротехнического эластичного материала [20], скорость горения которого составляет $\sim 2,5$ м/с.

Начальный участок представленной на рис. 4 зависимости давления от времени (до максимума) можно аппроксимировать функцией

$$p(t) = 20790t^6 - 37038t^5 + 25538t^4 - 8516,3t^3 + 1302,1t^2 - 2,8393t. \quad (3)$$

Зависимости изменения массы газа $W(t)$ и скорости выделения газа $\delta W/\delta t$ от времени в приемнике при срабатывании ГГ-4 приведены на рис. 10.

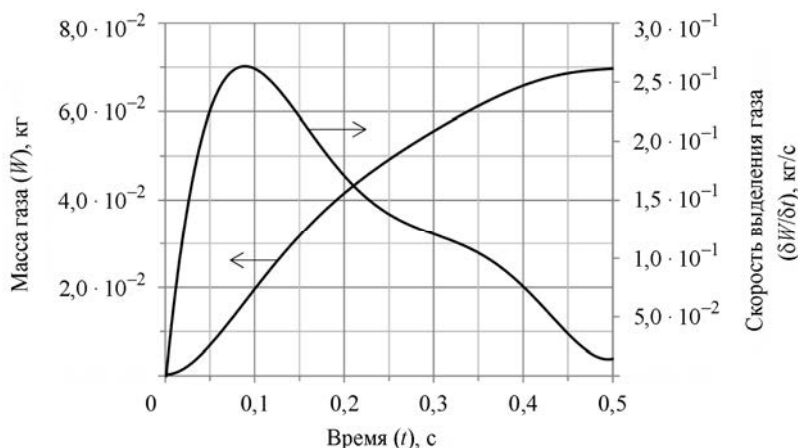


Рис. 10. Зависимости изменения массы газа и скорости выделения газа от времени в приемнике при срабатывании ГГ-4

В результате испытаний ГГ-4 (см. таблицу, рис. 4 и 10) определено быстродействие устройства, а именно: промежуток времени от момента подачи сигнала на срабатывание до поступления газа в приемник (около 13 мс), и отработана конструкция ГГЗ, обеспечивающая высокую скорость выделения газа (массовый расход).

Испытания макета ИМ АЗ с ГГ-4 не проводились, расчеты показали, что скорость подвижной части при перемещении из одного крайнего положения в другое в два раза выше, чем при срабатывании ГГ-3. При этом тормозное устройство макета (пневматический демпфер) не обеспечивает эффективного гашения кинетической энергии.

В заключение следует отметить, что создание ИМ АЗ с автономным источником энергии на основе пиротехнического ГГ для каждого конкретного случая не вызывает существенных трудностей, так как одной из основных задач разработки ГГ является обеспечение подачи газа с заданными расходом и давлением [21].

Заключение

Рассмотрен исполнительный механизм АЗ ядерного реактора с автономным источником энергии на основе пиротехнического газогенератора. Описана конструкция ГГ, предложен пиро-

технический состав газогенерирующего заряда. Приведены результаты испытаний автономных источников энергии и экспериментальные данные по испытанию макета исполнительного механизма АЗ, оснащенного газогенератором. Предложены алгоритм и расчетная модель, позволяющая определять скорость выделения рабочего газа (массовый расход), производимый газогенератором. Проведены расчеты макета исполнительного механизма АЗ с пиротехническим газогенератором. Показано хорошее согласие экспериментальных и расчетных данных. Расчетную модель рекомендуется использовать на стадии проектирования пневматического привода для определения его оптимальной конструкции и динамических характеристик.

Список литературы

1. Емельянов И. Я., Воскобойников В. В., Масленок Б. А. Основы конструирования исполнительных механизмов управления ядерных реакторов. М.: Энергоиздат, 1987.
2. Ионайтис Р. Р., Шведов Н. Л. Прямодействующая аварийная защита // Атомная техника за рубежом. 1988. Вып. 1. С. 10–16.
3. Кувшинов М. И., Смирнов И. Г., Воинов А. М., Довбыш Л. Е. Прямодействующая быстрая аварийная защита реактора с датчиком нейтронов на основе ядерно-оптического преобразователя // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов. 2000. Вып. 2/3. С. 117–119.
4. Леваков Б. Г., Лукин А. В., Магда Э. П. и др. Импульсные ядерные реакторы РФЯЦ-ВНИИТФ. Снежинск: РФЯЦ-ВНИИТФ, 2002.
5. Воинов А. М., Влох Г. В., Воронцов С. В. и др. Стенд критических сборок ИКАР-С. Результаты физического пуска // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов. 2007. Вып. 2. С. 29–33.
6. Колесов В. Ф. Аперiodические импульсные реакторы. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2007. Т. 1.
7. Бойко В. И., Кошелев Ф. П. Ядерные технологии в различных сферах деятельности человека. Томск: ТПУ, 2006.
8. Бассард Р., Деллауэр Р. Ядерные двигатели для самолетов и ракет. М: Изд-во МО, 1967.
9. Демянко Ю. Г., Конюхов Г. В., Коротеев А. С. и др. Ядерные ракетные двигатели. М: Норма-Информ, 2001.
10. Пат. РФ № 2086010, МПК6 G21C7/12. Устройство аварийной защиты ядерного реактора / Э. С. Степанов, В. А. Леонов, Ю. И. Краснощеков, В. В. Воскобойников // Изобретения. 1997. № 21.
11. Шидловский А. А. Основы пиротехники. М.: Машиностроение, 1973.
12. Fair H. D., Walker R. F. Energetic Materials. New York: Plenum Press, 1977. Vol. 1. P. 214.
13. Алешин В. В., Широкова Г. Н. Пиротехнические составы для получения азота на основе азидов // Химическая физика. 1999. Т. 18, № 2. С. 72–79.
14. Pat. 4243443 USA. Azide and doped iron oxide gas generating composition / A. M. Lechoslaw // ru.espacenet.com.1981.

15. Pat. 3895098 USA. Method and composition for generating nitrogen gas / J. F. Pietz // ru.espacenet.com.1975.

16. Pat. 4604151 USA. Method and compositions for generating nitrogen gas / G. D. Knowlton, J. F. Pietz // Ibid. 1986.

17. Исмаилов М. Б., Леонов А. Н. Исследование стадийности взаимодействия натрия с оксидами железа в волне горения // Физика горения и взрыва. 1990. № 3.

18. Пат. RU 2234364 С2, 7 В 01 J 7/00, С 06 D 5/06. Газогенератор / Е. В. Леваков, В. Н. Решетников, Н. А. Костюк, Д. А. Горькаев // Изобретения. Полезные модели. 2004. № 23.

19. Никитин И. А. Особенности конструкции и расчета пневматического исполнительного механизма импульсного ядерного реактора // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов. 2016. Вып. 4. С. 124–134.

20. Пат. RU 2306306 С2, МПК С06В 33/12. Состав для изготовления пиротехнического эластичного материала (варианты) / А. Ю. Постников, В. Е. Леваков, А. А. Татынов // Изобретения. Полезные модели. 2007. № 26.

21. Вспомогательные системы ракетно-космической техники / Под ред. И. В. Тишунина. М.: Мир, 1970.

Actuating Mechanism of Reactor Safety System with Independent Energy Source on the Base of Pyrotechnic Gas Generator

D. A. Gor'kaev, M. I. Krylova, I. A. Nikitin

There is described the design of actuating mechanism with independent energy source on the base of pyrotechnic gas generator aimed at chain nuclear reaction termination at abnormal reactor operation. There are considered the peculiarities of gas generator design as well as gas-generating pyrotechnic compositions on the base of sodium azide. There are presented the results of independent energy source models testing and the experimental data on studying the model of safety system actuating mechanism with gas generator. The algorithm and calculation model of gas generator consumption characteristic determination is proposed. The calculations of the actuating mechanism dynamic characteristics are performed. The results testify to the fact that pyrotechnic gas generator can be used as efficient energy source in the actuating mechanism of the nuclear reactor safety system.

УДК 621.039.7

Кондиционирование органических жидких радиоактивных ОТХОДОВ

В. А. Королев, Н. Т. Казаковский

Рассмотрены пути комплексного решения проблемы переработки и перевода в твердое состояние жидких радиоактивных отходов, содержащих тритий. Представлена технология эффективного выделения дисперсной фазы из двухфазных систем, в т. ч. коллоидных растворов, без использования фильтров и химических сорбентов. Описаны вновь применяемые материалы и технологии для отверждения органических жидких радиоактивных отходов.

Введение

Решение проблем по переработке, хранению и окончательной изоляции радиоактивных отходов (РАО), как накопленных за время реализации атомного проекта в СССР, так и производящихся в настоящее время, является важной государственной задачей. Федеральный закон № 190-ФЗ от 11.07.2011 г. «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты РФ», обязывает все организации, в результате деятельности которых образуются РАО, производить их утилизацию за счет собственных средств. При этом, услуги по сбору, переработке, кондиционированию, транспортированию и временному хранению всех типов РАО на территории РФ оказывают два Федеральных государственных унитарных предприятия: «Радон» и «РосРАО», входящие в Дивизион заключительной стадии жизненного цикла Госкорпорации «Росатом». Ответственность за окончательную изоляцию РАО несет специально созданный в 2012 г. Национальный оператор по обращению с РАО. В настоящее время национальным оператором начата эксплуатация первого и пока единственного в стране пункта окончательной изоляции твердых радиоактивных отходов (ТРО) третьего и четвертого классов (средне-, низко- и очень низкоактивные отходы) (федеральные нормы и правила в области

использования атомной энергии, «Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения», НП-093-14, утв. приказом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору № 572 от 15.12.2014 г.). Окончательное решение о возможности строительства пункта захоронения РАО первого и второго классов будет принято только после проведения всех исследований и анализа их результатов с целью гарантирования безопасности размещения отходов. Транспортировка ЖРО к месту проведения работ по кондиционированию экономически затратная, а их долговременное хранение требует наличия у организаций соответствующих лицензий.

В общих требованиях к обеспечению безопасности при сборе, переработке, кондиционировании и хранении ЖРО, закрепленных в федеральных нормах и правилах Российской Федерации в области использования атомной энергии (Федеральный закон «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации», № 190-ФЗ от 11.07.2011 г.; Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии, «Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения», НП-093-14, утверждены приказом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору № 572 от 15.12.2014 г.; Федеральный закон № 170-ФЗ от 21.11.1995 г. «Об использовании атомной энергии»; Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии, «Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности», НП-019-15 от 10.08.2015 г.), соответствующих нормам безопасности МАГАТЭ (Нормы МАГАТЭ по безопасности для защиты людей и охраны окружающей среды, «Правила безопасной перевозки радиоактивных материалов. Конкретные требования безопасности», Международное агентство по атомной энергии, Австрия, Вена, 2012 г. Нормы МАГАТЭ по безопасности для защиты людей и охраны окружающей среды, «Основополагающие принципы безопасности. Основы безопасности», Международное агентство по атомной энергии, Австрия, Вена, 2007 г.), ключевым аспектом является поддержание требуемого уровня безопасности при обращении с ЖРО как источника ионизирующего излучения. Целью кондиционирования ЖРО является уменьшение возможности распространения радионуклидов при переработке, хранении, транспортировании и захоронении. Кондиционированные РАО должны иметь твердое агрегатное состояние, характеризующееся оптимальной устойчивостью к радиационному, механическому, химическому, тепловому и биологическому воздействиям (Радиоактивные отходы. Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами (СПОРО-2002) СП 2.6.6.1168-02). Одним из путей решения данной задачи является снижение класса опасности ЖРО за счет выделения из них нерастворимых высокоактивных твердых компонентов, а также отверждения жидкой фракции. Оптимальной является реализация данных мероприятий силами организаций, в процессе деятельности которых образуются ЖРО, на месте образования с целью снижения класса опасности.

В лабораториях РФЯЦ-ВНИИЭФ проводятся работы по исследованию свойств гидридов и тритидов различных металлов. Для откачки технологических исследовательских установок, на которых проводятся работы с данным типом материалов, используются форвакуумные масляные насосы, которые позволяют обеспечить необходимые технические характеристики в широком диапазоне давлений. Так как исследуемые материалы зачастую представляют собой мелкодисперсные порошки, то при вакууммировании происходит оседание наиболее мелких частиц в рабочей жидкости насосов (вакуумном масле). Данный фактор оказывает негативное влияние на характеристики масла, ведет к повышенному износу деталей насосов и в конечном итоге приводит к тому, что насос перестает удовлетворять предъявляемым к нему требованиям по остаточному давлению. В связи с этим возникает необходимость проведения регламентных работ по замене вакуумного масла. При работе с тритидами заменяемое отработанное вакуумное масло не подлежит дальнейшему использованию, в связи с чем попадает в разряд ЖРО. Данный тип отходов

содержит в своем составе тритий радионуклид с высокой миграционной способностью, что накладывает существенные ограничения на весь процесс дальнейшего хранения, транспортировки и кондиционирования с целью соблюдения требований норм радиационной безопасности. Исходя из всего вышесказанного, с целью недопущения распространения радионуклидов в окружающую среду, превышения допустимого фонового уровня в рабочих помещениях и необоснованного переоблучения персонала были предложены технологические подходы, легко реализуемые в лабораторной практике, направленные на решение проблем по обращению с тритиевыми ЖРО.

Способ выделения из жидких радиоактивных отходов твердых нерастворимых компонентов

В ряде случаев ЖРО содержат нерастворимые мелкодисперсные твердые компоненты, находящиеся во взвешенном состоянии. При этом радиационную опасность может представлять и дисперсионная среда, и находящаяся в ней нерастворимая дисперсная фаза. В ряде случаев требуется проведение предварительного разделения компонентов ЖРО для проведения последующей утилизации. Необходимость разделения фаз становится особенно очевидной в случаях, когда твердая фаза содержит радиоактивные элементы, обладающие высокоэнергетичным излучением, вызывающим значительный радиолиз жидкой фазы, сопровождающийся выделением водорода при хранении. Основными способами разделения жидкости и распределенных в ней нерастворимых примесей являются фильтрование и химическое связывание дисперсной фазы с последующим отделением образовавшегося осадка. Одним из часто встречающихся случаев рассматриваемых ЖРО являются отходы минеральных масел или водно-масляных эмульсий, содержащих в своем составе нерастворимые механические примеси. ЖРО минеральных масел часто образуются в вакуумных насосах при работе на технологическом оборудовании с порошками радиоактивных материалов. ЖРО эмульсий образуются при механической обработке радиоактивных материалов.

Масло с распределенными в нем нерастворимыми мелкодисперсными твердыми компонентами является дисперсной системой, состоящей из твердой дисперсной фазы и жидкой дисперсионной среды (система т/ж). Особенности свойств дисперсных систем обусловлены наличием большой межфазной поверхности. В связи с этим, определяющими являются свойства поверхности, а не частиц в целом. Согласно [1], по размеру частиц дисперсную фазу можно разделить на три основных вида:

- грубодисперсные с размером частиц $>10^{-5}$ м;
- микрогетерогенные с размером частиц от 10^{-5} до 10^{-7} м;
- ультрамикрогетерогенные (коллоидные) с размером частиц от 10^{-7} до 10^{-9} м (1–100 нм).

Грубодисперсные и микрогетерогенные дисперсные системы визуально непрозрачны, в течение времени дисперсная фаза седиментирует в гравитационном поле, кроме того частицы можно выделить путем фильтрации, с использованием бумажных фильтров. В коллоидных системах дисперсная фаза находится в состоянии кинетического равновесия с дисперсионной средой и частицы задерживаются только ультрафильтрами (мембранами), которые имеют сложную структуру и невысокий ресурс использования. В связи с этим процесс полной, многоступенчатой фильтрации дисперсной фазы с использованием фильтров является технически сложным, дорогостоящим, сопровождается образованием вторичных РАО, по этой причине применение его при

работе с радиоактивными материалами ограничено. Седиментацию коллоидных частиц можно проводить в центробежном поле, создаваемом при помощи центрифуг.

Если проводить обработку центрифугированием вакуумного масла со взвешенными мелкодисперсными частицами, то после завершения процесса частицы сконцентрируются на дне емкости с маслом. После разделения мы получим две фракции масла: чистое (свободное от взвешенных частиц) и с повышенным их содержанием. При отверждении такого масла имеющаяся проблема радиолитического распада только обострится. Авторами было предложено добавлять в масло вторую (разделяющую) жидкость, в которой при центрифугировании происходило бы концентрирование мелкодисперсных частиц, и отверждение которой в лабораторных условиях не вызвало бы трудностей. В качестве разделяющей жидкости для масла с распределенными в нем частичками было предложено использовать воду. Эти две жидкости практически не смешиваются между собой, после локализации мелкодисперсных частиц в воде возможно безопасное их разделение и связывание в твердую матрицу с использованием простых технологий. Относительно возможного химического взаимодействия между водой и радиоактивным материалом в каждом конкретном случае потребуются дополнительные исследования. Но прежде всего, необходимо заметить, что частицы материала, перешедшие в воду, будут покрыты гидрофобной пленкой масла, а время их нахождения в воде до связывания последней в твердую матрицу будет ограничено несколькими часами.

При переходе в воду твердые частицы должны будут преодолевать силу поверхностного натяжения воды. По данным [2], коэффициенты поверхностного натяжения на границе жидкость/воздух составляют: вода = 73 мН/м, масло 32 мН/м. Согласно [1], межфазовое натяжение на границе двух несмешивающихся жидкостей равно разности поверхностных натяжений этих жидкостей (на границе с воздухом или собственным паром) в условиях взаимного насыщения. Соответственно, межфазовое натяжение на границе масла и воды будет составлять ~41 мН/м. Другими словами, переход частицы материала через границу раздела фаз потребует меньшей энергии, чем для их перехода с поверхности воды в объем.

Для проведения модельных испытаний по отработке технологии, предназначенной для обращения с радиоактивными отходами, использовались нерадиоактивные материалы.

Для проведения исследований использовалось вакуумное масло VM-1C (ТУ 38.1011187-88). В пробу масла массой 50 г добавили 0,1 г порошка гидрида титана и тщательно перемешали. От полученной пробы отобрали два образца массой по 3 г и поместили их в пластиковые пробирки объемом 10 см³. Далее в пробирки добавили по 3 мл дистиллированной воды. Пробирки с полученной смесью центрифугировали в центрифуге ЦЛС-3 в наклонном роторе при 5000 об/мин в течение 10 мин. После этого при визуальном осмотре было выявлено, что произошло разделение компонентов и основная часть порошка гидрида титана перешла из масла в воду. В имеющейся центрифуге используется стандартный угловой ротор с углом наклона 40° и вектор центробежной силы направлен не вдоль оси пробирки, а под углом. В связи с этим, некоторая часть порошка сконцентрировалась на стенках и после перевода пробирок в вертикальное положение оказалась в масляной зоне. Для устранения данного эффекта было проведено дополнительно десять циклов центрифугирования, перед каждым из них пробирки поворачивали на 180° вокруг оси. В результате, порошок гидрида титана полностью перешел в воду и сконцентрировался в донной части пробирок, а масло приобрело прозрачность, визуально сопоставимую с первоначальной. Далее, из каждой пробирки отбирали по 2/3 частей масла в отдельную емкость, добавляли новую порцию масла, смешанного с порошком гидрида титана, и проводили центрифугирование по описанной ранее схеме.

После перевода порошка гидрида титана в воду из всей предварительно подготовленной масляной пробы были проведены работы по окончательному разделению воды и масла. Для этой

цели пробирки, в которых находились вода с порошком гидрида титана и остатки очищенного масла, выдерживали при температуре $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$ в течение 20 мин. до полного перехода воды в состояние льда и иммобилизации в нем выделенного из масляной смеси порошка. Масло, оставшееся в жидком состоянии, было удалено из пробирок при помощи пипетки. Для удаления оставшейся масляной пленки со стенок и поверхности льда в пробирки добавили по 1 г уайт-спирита (нефрас-С4-155/200, ТУ 2319-006-71371272-2006), который также был предварительно охлажден до температуры $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$. После промывки пробирки, уайт-спирит с растворенными в нем остатками масла перенесли в емкость с очищенным маслом. После разделения полученные жидкие фракции были переведены в твердое состояние.

Проверка полноты выделения порошка из масла проводилась на фотометре. Измерялась прозрачность масла до и после проведения экспериментов.

Способ отверждения жидких радиоактивных отходов нефтепродуктов

В настоящее время существует множество различных способов кондиционирования органических ЖРО, которые условно можно отнести к следующим направлениям: деструкция органических соединений, очистка от радиоактивных составляющих и иммобилизация в матричный материал. По первому направлению проводится сжигание (окисление) или пиролиз органических соединений. При сжигании ЖРО происходит образование большого количества газообразных продуктов, требующих дополнительной очистки. Например, в случае присутствия в ЖРО трития происходит образование тритиевой воды, уровень радиационной опасности которой на несколько порядков выше, чем у газообразного трития. Способы очистки ЖРО от радиоактивных составляющих также имеют ограничения по применению. Кроме того, технология таких способов достаточно сложна и может быть реализована только в условиях специальных производств. В связи с этим прямое отверждение в матрицы органического или неорганического типа представляется наиболее легко реализуемым и перспективным подходом.

В результате проведенных в РФЯЦ-ВНИИЭФ работ был предложен и успешно внедрен в лабораторную практику способ отверждения загрязненного тритием вакуумного масла [3]. Суть способа состоит в смешивании радиоактивного вакуумного масла с парафином и последующем охлаждении. Несмотря на очевидные преимущества данного способа, актуальность и новизна которого подтверждена полученным на него патентом, при практической реализации возникает необходимость в расширении номенклатуры отверждаемых материалов, повышении температурной стойкости и наполняемости конечного компаунда исходными ЖРО. По результатам проведенного литературного поиска, было предложено провести исследования по определению возможности использования в качестве матричного материала смеси предельных углеводородов, состоящей из материалов: парафин, стеариновая кислота и церезин. Все эти материалы имеют схожую химическую природу, а также являются твердыми веществами. Измеренная температура каплепадения стеариновой кислоты ($62\text{ }^{\circ}\text{C}$) и церезина ($78\text{ }^{\circ}\text{C}$) существенно выше, чем у парафина ($52\text{ }^{\circ}\text{C}$). Соответственно данный фактор должен сыграть положительную роль в повышении температурной стойкости получаемого компаунда.

С целью достижения поставленной задачи по повышению наполняемости конечного компаунда исходными ЖРО, определен оптимальный состав смеси для отверждения. Выбор состава проводился на примере вакуумного масла по критериям конечного компаунда: максимальные наполнение маслом и температурная стабильность. Для проведения исследований было приготовлено 46 образцов смесей с различным содержанием компонентов стеариновой кислоты, парафина

и церезина (массовое содержание от 5 до 90 %). Для приготовления образцов проводили сплавление компонентов, взятых в заданном соотношении. Суммарная масса компонентов выбиралась из расчета получения образцов диаметром 60 мм и высотой 2–3 мм. Сплавление проводили в алюминиевых формах на галогенном анализаторе влажности Mettler Toledo HR83 путем нагрева до температуры 82 ± 1 °С со скоростью 5 град/мин. и последующей выдержки в течение 10 мин., с одновременным контролем массы образца. При этом происходили расплавление и перемешивание компонентов, потеря массы образцов не наблюдалась. После охлаждения до комнатной температуры образцы из форм извлекали и проводили их визуальный осмотр. К дальнейшим исследованиям принимались образцы визуально однородные и имеющие прочность, позволяющую обращаться с ними без охранных приспособлений.

Для определения предельной степени наполнения маслом образцов исследуемых смесей их помещали в алюминиевые формы, туда же добавляли отработанное вакуумное масло в весовом соотношении 1:2 (с заведомым избытком). Массу образцов и количество добавленного масла контролировали с погрешностью не более $\pm 0,01$ г. Далее образцы сплавляли с маслом в описанном выше порядке. После охлаждения образцы извлекали из форм и заворачивали в фильтровальную бумагу. Через 24 ч. основная часть избыточного масла впитывалась фильтровальной бумагой, а для удаления остатков масла поверхность образцов протирали марлей, смоченной в этиловом спирте. Далее образцы взвешивали и рассчитывали содержание в них масла. Затем образцы расплавляли повторно, после охлаждения помещали на фильтровальную бумагу и через 24 ч контролировали выделение из них избытка масла. Для всех исследованных образцов выделения масла не наблюдалось. По этой причине содержание масла в образцах смесей после первого сплавления и удаления выделившихся избытков принималось за максимально возможное. Далее образцы с максимальным наполнением маслом тестировали на термостабильность. Испытания заключались в прогреве образцов при 45 ± 1 °С в течение 2 ч. Образцы помещали на фильтровальную бумагу и прогревали на анализаторе влажности Mettler Toledo HR83. Образец считали термостабильным в случае отсутствия следов масла на фильтровальной бумаге после прогрева. По результатам проведенных исследований предпочтение было отдано отверждающей смеси следующего состава: массовое содержание 80 % стеариновой кислоты + 10 % парафина + 10 % церезина. Кроме того, были проведены измерения температуры каплепадения пяти образцов полученного компаунда, среднее значение указанного параметра составило: 63 ± 1 °С. Для формирования конечного компаунда рекомендуется использовать отверждающую смесь и вакуумное масло в весовом соотношении 1:1.

Для проверки возможности практического применения предлагаемого способа был изготовлен опытный образец. Для изготовления использовали 10 г загрязненного тритием вакуумного масла ВМ-1С (ТУ 38.1011187-88) с удельной активностью $2,1 \times 10^9$ Бк/г и 10 г отверждающей смеси. Полученный твердый однородный образец с удельной активностью 1×10^9 Бк/г был помещен на фильтровальную бумагу и заключен в контейнер. За 40 дней хранения внешний вид образца не изменился, маслоотделения не наблюдалось.

При взаимодействии ионизирующего излучения с веществом происходят процессы деструктивного характера или радиолиз. При радиолизе органических соединений происходит разрыв связей С–С, С–Н и связей углерода с функциональными группами, в результате чего появляются радикалы нескольких типов, при взаимодействии которых образуются соединения, как с меньшим, так и с большим числом углеродных атомов, чем в исходной молекуле. Число образующихся при радиолизе соединений как правило велико. При радиолизе пентана, например, образуется более 17 соединений, кроме того, происходит дегидрирование с образованием водорода и соединений с двойной связью. Основным газообразным продуктом радиолиза органических соединений, особенно алканов, является водород. При введении в облучаемое вещество акцептора ради-

калов, например, гексилметакрилата выход водорода снижается в несколько раз, до определенного предела [4].

Количественной характеристикой радиационно-химических превращений является радиационно-химический выход G , который представляет собой число молекул, ионов, атомов, свободных радикалов и т. п., образующихся (или расходуемых) при поглощении веществом 100 эВ энергии ионизирующего излучения. Значения радиационно-химического выхода водорода $G(H_2)$ для различных соединений отличаются друг от друга. Рассматриваемая система (отвердитель–масло) имеет сложный химический состав, основными компонентами которой являются насыщенные углеводороды. Для упрощения дальнейших оценок будем считать, что смесь представляет собой насыщенные углеводороды усредненного состава $C_{27}H_{56}$ и молекулярной массы 380 у. е. По данным, представленным в работе [5], для предельных углеводородов можно принять среднее значение выхода $G(H_2) = 5$.

Для предельных углеводородов с прямой цепью количество продуктов радиолитического распада с числом атомов углерода меньше, чем в материнском соединении, уменьшается по мере возрастания длины цепи и одновременно повышается доля высокомолекулярных продуктов. Таким образом, излучение в данном случае увеличивает средний молекулярный вес углеводородов, что легко заметить по изменению физических свойств облучаемого материала. Например, в жидких системах появляются нерастворимые гели, а у твердых соединений возрастает температура плавления [5].

На основании приведенных данных можно провести оценку предельного количества водорода, образующегося при полном распаде трития в рассматриваемой смеси отвердителя и загрязненного тритием вакуумного масла. При проведении оценок влиянием акцепторов радикалов пренебрежем, кроме того будем считать, что вся энергия распада передается смеси.

Рассмотрим вариант практической реализации предложенного способа отверждения масла. Предположим, что отверждение вакуумного масла будем проводить в контейнере объемом 1 л. Массы компонентов смеси: масло – 250 г, отвердитель – 250 г. По данным работы [6], максимальное содержание трития в масле насосов, используемых для откачки чистого трития, может составлять $3,7 \times 10^{11}$ Бк/кг. Предполагаемый к захоронению образец смеси будет иметь максимальную активность $\sim 1,2 \times 10^{11}$ Бк, и при радиационно-химическом выходе $G(H_2) = 5$ максимальная скорость образования водорода в образце на начальном этапе хранения будет определяться уравнением

$$v = N \times K \times G(H_2) \times 3,7 \times 10^{10}, \quad (1)$$

где v – скорость образования водорода, молекул/с; N – количество трития в образце, Бк; K – коэффициент, равный средней энергии распада, деленной на 100 эВ, в нашем случае $K = 56$.

При подстановке в (1) численных значений и дальнейших преобразованиях получаем, что максимальная скорость образования водорода составляет $\sim 0,1$ см³/сутки и далее будет снижаться в соответствии с законом радиоактивного распада.

Удельная активность трития составляет $9,73 \times 10^{12}$ Бк/см³ [7], образец активностью 10^{11} Бк будет содержать 1,14 см³ чистого трития. Как следует из приведенных выше данных, при распаде двухатомной молекулы трития в результате радиолитического распада произойдет образование $56 \times 5 \times 2 = 560$ молекул водорода. Таким образом, например, через 100 лет хранения, при практически полном распаде 1,14 см³ трития, произойдет образование $1,14 \times 560 = 638$ см³ водорода. При проведении настоящей оценки было сделано предположение, что состав смеси соответствует соединению $C_{27}H_{56}$, отсюда образец смеси весом 1 кг должен содержать ~ 1650 л водорода. С учетом этого можно считать, что при практически полном распаде трития произойдет выделение всего $\sim 0,05$ % водорода, находящегося в образце.

Для проведения оценок предельного количества водорода, образующегося при радиоллизе отвержденного образца тритийсодержащего масла в течение заданного времени хранения, можно пользоваться соотношением

$$V_{H_2} = Q(1 - e^{-\lambda \times \tau}) \times 56 \times 5 \times 3,7 \times 10^{10} \times 2/2,63, \quad (2)$$

где V_{H_2} – объем водорода, см³; Q – количество трития в образце, Бк; λ – постоянная радиоактивного распада трития, год⁻¹; τ – время хранения, год.

Свободный объем предполагаемого контейнера для хранения с помещенной в него смесью составляет ~500 см³. Если исключить проникновение водорода из контейнера, то избыточное давление водорода в нем на момент практически полного распада трития составит ~2,2 атм. В реальности крышка и корпус контейнера уплотняются резиновой прокладкой, коэффициент проницаемости водорода через резину достаточно высок. По данным, приведенным в работе [6] (с. 33), для нитрильной резины он составляет $(0,52 - 1,7) \times 10^{-6} \text{ см}^3 \text{ см} / (\text{см}^2 \times \text{с} \times \text{МПа})$. Оценки показывают, что предельное давление в контейнере не превысит 0,11 МПа, при этом избыточный водород будет выходить в атмосферу через резиновую прокладку с максимальной удельной скоростью 0,1 см³ /сутки × кг смеси. Как отмечалось выше, выделение водорода можно снизить в несколько раз путем использования соответствующих добавок [4]. Этот вопрос должен рассматриваться исходя из требований, предъявляемых к отходам, для конкретных мест хранения/захоронения.

При практической проверке степени радиолиза, образец выдерживался в инертной среде течение 12 мес. в герметичном контейнере. По результатам масс-спектрометрического анализа отобранной пробы, с чувствительностью метода 0,01 %, водород не обнаружен. Результаты данных исследований говорят о том, что концентрация водорода в пробе была <0,3 %.

В соответствии с описанным выше порядком, были проведены работы по отверждению некоторых промышленно выпускаемых органических растворителей (сольвент, ксилол, керосин, уайт-спирит, бензин «галоша»). При этом массовое содержание растворителей в конечном компанде составляло 10 %.

Предел растворимости для данных материалов не определялся в связи с тем, что химический состав материалов в пределах одного и того же стандарта может изменяться в широком диапазоне. Поэтому при практическом отверждении ЖРО конкретного органического растворителя необходимо проведение предварительных макетных испытаний.

С целью отработки технологии отверждения вакуумного масла с использованием смеси предельных углеводородов было проведено кондиционирование 1 кг среднеактивного тритийсодержащего масла. Для оценки возможных негативных последствий, проводимых операций для персонала и окружающей среды все работы проводились при постоянном дозиметрическом контроле. Были проведены предварительные исследования по анализу сложившейся радиационной обстановки в рабочем помещении. Далее проводились измерения объемной активности во время работ по кондиционированию.

Исследования проводились по следующим параметрам:

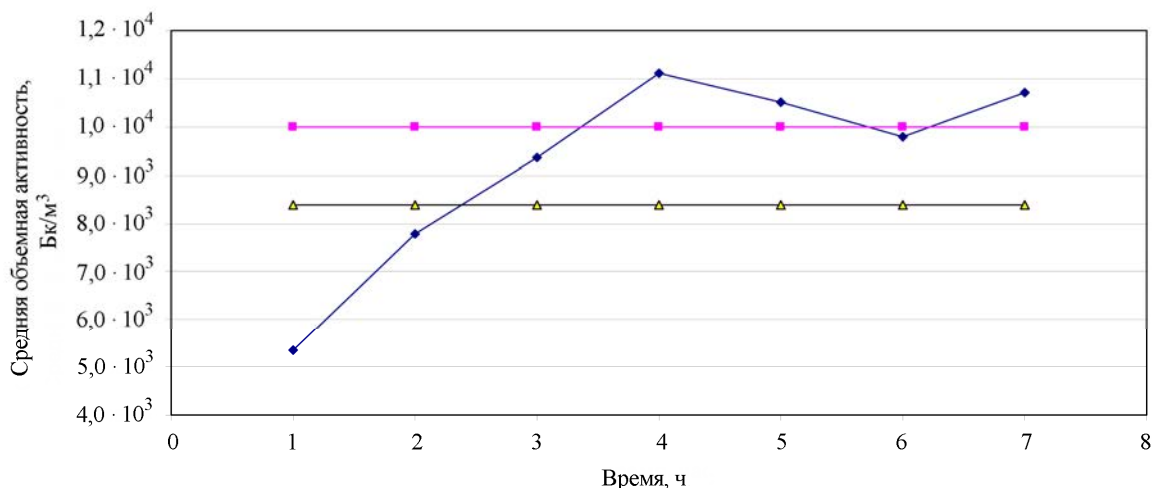
- объемная активность трития в воздухе рабочего помещения;
- объемная активность трития в вентиляционном выбросе;
- дозы внутреннего облучения персонала.

Результаты измерений объемной активности трития при анализе сложившейся радиационной обстановки до проведения работ и радиометрического контроля в ходе работ по отверждению радиоактивного масла приведены в таблице.

Результаты измерений объемной активности трития

Место контроля	Объемная активность до проведения работ		Объемная активность в ходе проведения работ		Контрольный уровень, Бк/м ³
	средняя, Бк/м ³	максимальная, Бк/м ³	средняя, Бк/м ³	максимальная, Бк/м ³	
В воздухе рабочего помещения	$1,00 \times 10^4$	$2,00 \times 10^4$	$8,40 \times 10^3$	$1,26 \times 10^4$	$3,70 \times 10^5$
В вентиляционном выбросе	$1,80 \times 10^4$	$3,10 \times 10^4$	$1,80 \times 10^4$	$6,03 \times 10^4$	

Результаты расчета средней почасовой объемной активности в воздухе рабочего помещения и усредненной объемной активности в день проведения работ относительно усредненного фонового значения, определенного за последние три месяца (A_0), представлены на рисунке (см. также цветную вкладку).



Результаты расчета средней почасовой объемной активности в воздухе рабочего помещения:
 —◆— измеренная средняя почасовая объемная активность в день проведения работ;
 —■— усредненное фоновое значение (A_0), определенное за последние три месяца;
 —▲— усредненное значение активности в день проведения работ

Как видно из приведенного графика, несмотря на то что наблюдалось незначительное превышение средней почасовой объемной активности относительно фонового уровня в воздухе рабочего помещения, усредненная объемная активность за весь день проведения работ была ниже, чем среднее фоновое значение за последние три месяца. Максимальное значение объемной активности в воздухе помещения составило $1,26 \times 10^4$ Бк/м³, что в ~ 30 раз меньше контрольного уровня для данного помещения, который составляет $3,70 \times 10^5$ Бк/м³.

Измерение дозы внутреннего облучения персонала, участвовавшего в проведении работ, проводилось на низкофономом жидкостном сцинтиляционном альфа-бета радиометре спектрметрическом «TRI-CARB 3110 TR/SL». По результатам измерений до и после проведения работ по отверждению радиоактивного масла, доза внутреннего облучения персонала оказалась ниже чувствительности измерения прибора.

После завершения работ были отобраны мазки с поверхности контейнера с отвержденным маслом. Загрязнение внешней поверхности контейнера составило $0,6 \text{ Бк/см}^2$, что в ~ 33 раза меньше установленного контрольного уровня поверхностного загрязнения упаковки для отправки в сторонние организации, который составляет $20,0 \text{ Бк/см}^2$.

Заключение

По результатам проведенных исследований следует отметить, что после отверждения уменьшается категория опасности отходов. Данный фактор оказывает существенное влияние на радиационную безопасность в процессе дальнейшего обращения с образующимися РАО.

Разработанные технологии базируются на способах, которые ранее не предлагались. Уникальность, прежде всего, состоит в простоте их реализации. По этой причине отверждение ЖРО может проводиться на месте их образования, в любых лабораторных или производственных условиях без использования высокотехнологичного специализированного оборудования. Внедрение предлагаемых разработок позволит, во-первых, исключить необходимость хранения ЖРО на местах их образования, что повысит радиационную безопасность производства, во-вторых, существенно снизить затраты предприятия на транспортировку к месту переработки и проведение кондиционирования ЖРО сторонней организацией. Простота и технологичность предложенных способов позволяют использовать их для создания мобильных комплексов по переработке ЖРО на месте их образования. Важным фактором экологической безопасности предлагаемых способов является то, что при проведении работ не образуются вторичные РАО.

Предлагаемые способы являются универсальными, применимыми к широкому спектру материалов, при их реализации используется широко распространенное лабораторное оборудование, при практическом применении возможно достичь высокой производительности. Результаты, полученные в ходе проведенных исследований, говорят о соответствии предложенных способов нормам и правилам в области обращения с РАО.

Немаловажно при работе с такими радионуклидами, как тритий, то, что возможно проводить весь процесс выделения и последующей фиксации дисперсной фазы в устойчивом матричном материале без контакта с окружающей средой (в вакуумном боксе).

Радиационный контроль на всех стадиях проведения работ показал их безопасность для персонала и окружающей среды. Значения объемной активности в воздухе рабочего помещения и вентиляционном выбросе, внешней поверхности контейнера с полученными ТРО, а также дозы внутреннего облучения персонала, участвовавшего в проведении работ, в десятки раз ниже действующих контрольных уровней.

На разработанные способы кондиционирования ЖРО получены два патента на изобретения [8, 9].

Список литературы

1. Методические разработки к практикуму по коллоидной химии / Под ред. Н. М. Задымовой, Н. И. Ивановой. М.: Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, 2012.

2. Адамова Л. В. Процессы на поверхности раздела фаз. Екатеринбург: Нанотехнологии и перспективные материалы, 2007.

3. Пат. 2589040, G21F9/16. Способ отверждения тритийсодержащего нефтяного масла // Бюллетень. 2016. № 19.

4. Дозиметрический и радиометрический контроль при работе с радиоактивными веществами и источниками ионизирующих излучений. Т. 1. Организация и методы контроля / Под ред. В. И. Гришмановского. М.: Атомиздат, 1980.

5. Несмеянов А. Н. Радиохимия. М.: Химия, 1978. С. 126–127.

6. Беловодский Л. Ф., Гаевой В. К., Гришмановский В. И. Тритий. М.: Энергоатомиздат, 1985. С. 180.

7. Спинкс Дж., Вудс Р. Введение в радиационную химию. М.: Атомиздат, 1967. С. 277.

8. Пат. 2637811, G21F9/16. Способ переработки жидких радиоактивных отходов // Н. Т. Казаковский, В. А. Королев. Бюллетень. 2017. № 34.

9. Пат. 2654542, G21F9/16. Способ отверждения органических жидких радиоактивных отходов // Н. Т. Казаковский, В. А. Королев. Бюллетень. 2018. № 15.

Conditioning Organic Liquid Radioactive Wastes

V. A. Korolev, N. T. Kazakovsky

Considers the approaches to a comprehensive solution of the problem dealing with the reprocessing and conversion into the solid state liquid radioactive wastes containing tritium. The proposed technology is effective for the disperse phase separation from the two-phase systems, including colloidal solutions, without the use of filters and chemical sorbents. New materials and methods used for hardening the organic liquid radioactive wastes are described.

УДК 621.039.3

Способ кондиционирования воды, содержащей третий

**Н. Т. Казаковский, С. Е. Леваков,
В. А. Королев, Д. С. Орлов, А. А. Юхимчук**

Опробована возможность отверждения тритийсодержащей воды, посредством локализации ее в матричный материал на основе гексагидрата калий-магний фосфата. Проведены исследования данного материала на радиационную стойкость и химическую устойчивость. Полученные в настоящей работе результаты показывают хорошую перспективу для применения данного способа кондиционирования воды, содержащей тритий.

Введение

В процессе работы с тритийсодержащими материалами в научно-исследовательских, лабораторных и технологических установках возможно образование жидких радиоактивных отходов (ЖРО). По принятым в настоящее время нормам и правилам (Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности. НП-019-2000, утверждены Постановлением Госатомнадзора России № 7 от 27 сентября 2000.) обращение с ЖРО предусматривает их обязательное кондиционирование, т. е. перевод в отвержденную форму, обладающую химической, термической, радиационной устойчивостью. Данная форма должна быть стабильна для временного хранения, транспортировки и последующего захоронения отходов.

Выбор решения для стабилизации специфичного типа отходов зависит от их химической природы и уровня радиотоксичности. Для кондиционирования водных ЖРО в твердое состояние используют различные методы, основанные на выделении растворенных радионуклидов путем: выпаривания, химического осаждения, связывания сорбентами и т. д., с последующей локализацией в различные матричные материалы. Наибольшее практическое применение нашли отвердители на основе цементов [1] с различного рода добавками [2]. В то же время для тритийсодержащих отходов эти методы неприменимы. Тритий, содержащийся в воде, обладает высокой миграционной способностью. В ряде случаев переработка образовавшейся воды с целью извлечения трития для дальнейшего использования технически сложна, а порой экономически нецелесообразна. Поэтому возникает необходимость в разработке способов отверждения водных ЖРО,

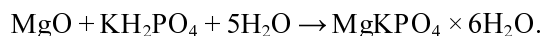
содержащих тритий. Очевидно, что во время проведения работ по их отверждению, а также при последующем длительном хранении или захоронении необходимо использовать материалы, не допускающие выделения тритиевой воды в окружающую среду. Общими недостатками использования смесей на основе цемента, делающими такие подходы для отверждения тритийсодержащей воды неприемлемыми, являются:

- избыток воды при затворении цементной смеси (~30 %), который в процессе формирования конечного блока (до 25 сут) может выделиться в окружающую среду;
- невысокий процент химически связанной воды цементной матрицы в составе конечного блока (~5 %).

Проведенный анализ существующих способов отверждения водных ЖРО показал, что при кондиционировании тритийсодержащей воды наиболее приемлемыми могут оказаться методы, основанные на химическом связывании воды, например, в состав гидроксидов или кристаллогидратов. Задачей проведенных исследований являлась разработка подходов безопасного кондиционирования тритийсодержащей воды.

Проведенные исследования и полученные результаты

В 2006–2008 гг. в РФЯЦ-ВНИИЭФ в рамках проекта МНТЦ проводились работы с керамикритными композитами (СМК) на основе гексагидрата калий-магний фосфата (ГКМФ) в качестве материалов, ослабляющих нейтронное и гамма-излучение (технический отчет проекта МНТЦ 2807р «О требованиях к керамикритным композитам, предназначенным для использования в контейнерах для перевозки и длительного хранения ОЯТ», РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2006). Полученные результаты и имеющиеся литературные данные указывали на высокую радиационную и химическую стойкость данного материала. Тот факт, что гексагидрат содержит по массе до 33 % химически связанной воды, обратил на себя внимание, и по совокупности свойств было принято решение о проведении исследований оценки возможности использования данного гексагидрата в качестве матричного материала для кондиционирования (отверждения) воды, содержащей тритий. ГКМФ состава $MgKPO_4 \times 6H_2O$ образуется при взаимодействии отожженной окиси магния MgO , дигидроортофосфата калия KH_2PO_4 и воды по уравнению реакции



Реакция (см. уравнение) является экзотермической, при ее протекании по данным работы [3] выделяется 368,35 кДж. Для синтеза гексагидрата все исходные компоненты берутся в стехиометрическом соотношении. С учетом того что калий фосфорно-кислый в процессе реакции должен максимально полно раствориться в воде, а реакция происходит на поверхности частиц оксида магния, максимальный размер частиц порошков должен быть не более 100 мкм.

Перед добавлением воды исходные компоненты необходимо тщательно перемешать. В подготовленную смесь порошков вносят тритийсодержащую воду и перемешивают любым доступным способом до получения однородной суспензии. Затвердевание полученной суспензии с последующим связыванием в монолитный блок происходит через несколько минут, а набор максимальной прочности, по данным технического отчета МНТЦ 2807р «О требованиях к керамикритным композитам, предназначенным для использования в контейнерах для перевозки и длительного хранения ОЯТ» (РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2006), – через 24 ч.

Радиационная стойкость кристаллогидрата

По описанной выше схеме с использованием тритийсодержащей воды был изготовлен специальный образец для проведения исследований радиационной стойкости кристаллогидрата при хранении. При изготовлении образца использовали тщательно перемешанную смесь порошков прокаленного оксида магния MgO и дигидроортофосфата калия KH_2PO_4 . Смесь поместили в стеклянную кювету цилиндрической формы и при перемешивании в нее добавили тритийсодержащую воду. Соотношение компонентов соответствовало стехиометрическому составу, необходимому для получения ГКМФ. Характеристики образца на момент изготовления: масса 54 г, общее количество трития в образце ($Q_{\Sigma\text{тр.}}$) составляло $2,2 \times 10^9$ Бк, площадь открытой поверхности $6,5 \text{ см}^2$. Затем кювету с образцом поместили в суперконтейнер с ионизационной камерой. Измерение активности газовой среды в контейнере проводили еженедельно на протяжении 7,5 лет. За время наблюдений активность газовой среды в контейнере снизилась с $3,9 \times 10^3$ до $4,1 \times 10^2$ Бк/л, почти в 9,5 раз. Указанное снижение активности за период измерений происходило за счет убыли трития в газовой фазе вследствие радиоактивного распада и возможной перекристаллизации кристаллогидрата в процессе хранения [4]. Снижение активности газовой среды в контейнере с образцом указывало на то, что тритий или НТО из образца в атмосферу контейнера не поступал, т. е. надежно связан в составе кристаллогидрата.

При хранении радиоактивных материалов, содержащих воду, в результате радиолиза возможно образование водорода. Для оценки степени протекания процессов радиолиза из контейнера с образцом была отобрана проба газа и проведен масс-спектрометрический анализ. По результатам анализа, продуктов возможного радиолиза, прежде всего водорода, в газовой среде обнаружено не было, при чувствительности метода не хуже объемной доли, равной 0,01 %. По всей вероятности, высокая радиационная стойкость ГКМФ обусловлена тем, что вода равномерно распределена в материале. По этой причине значительная доля энергии, выделяющейся при распаде трития, поглощается атомами кристаллической решетки, и процесс радиолиза кристаллизационной воды практически не происходит. Высокая радиационная стойкость гексагидрата была также отмечена и в [5].

После завершения исследований радиационной стойкости, по прошествии 7,5 лет, контейнер с образцом был разобран. Визуальный осмотр образца показал, что он представлял собой плотную, однородную массу без визуально заметных трещин, отслоений, и поэтому он был использован при проведении дальнейших исследований.

Исследования стойкости получаемого компаунда к выщелачиванию

Одним из важных требований, предъявляемых к матричному материалу для кондиционирования ЖРО, является его химическая устойчивость, определяемая методом длительного выщелачивания. Под выщелачиванием понимается выделение радионуклида из образца в контактный раствор (дистиллированную воду или солевой раствор) при хранении. Количественные характеристики критериев водоустойчивости различных форм отвержденных РАО описаны ГОСТ Р 51883-2002 «Отходы радиоактивные цементированные». Основным измеряемым параметром данного критерия является скорость выщелачивания радионуклида. Применение ГКМФ для отверждения тритиевых водных ЖРО наиболее близко к методу цементации, поэтому для контроля допустимых пределов показателей качества конечного компаунда возможно применение критериев, относящихся к цементным компаундам. Скорость выщелачивания радионуклидов из цементных компаундов регламентирована только для Cs-137 как радионуклида, соединения которого

обладают наибольшей растворимостью в воде. Для оценки качества цементных компаундов, содержащих тритий, выщелачивание как показатель качества не применяется (см. ГОСТ Р 51883-2002). Несмотря на это, действующие нормы и правила (НП-019-2000) указывают, что «...при использовании в новых областях известных или вновь предлагаемых материалов, для поддержания необходимого уровня науки и техники, положительная направленность предлагаемых нововведений должна подтверждаться научными исследованиями, практическим опытом и отражена в научно-технических материалах». В связи с этим было проведено исследование процесса выщелачивания тритиевых водных ЖРО, отвержденных в составе ГКМФ.

Для проведения исследований кювету с образцом после 7,5 лет хранения и после извлечения из контейнера, снабженного ионизационной камерой, поместили в охранный емкость с крышкой. К образцу добавили дистиллированную воду в количестве 20,48 см³. При этом отношение объема контактного раствора к площади открытой поверхности образца составляло 3,15 см, что соответствовало требованиям ГОСТ Р 51883-2002. Для предотвращения испарения воды в ходе эксперимента охранный контейнер закрывался крышкой. В течение всего времени хранения проводился отбор проб воды из кюветы с образцом с заданной периодичностью. Измерение активности отобранных проб проводили на радиометре РКБ-05П. В связи с тем что верхний предел измерений радиометра составляет 10⁷ Бк/кг, что заведомо ниже уровня активности отбираемых проб, перед проведением измерений пробы многократно разбавляли. С целью уменьшения количества контактного раствора, содержащего тритий, и минимизации образования ЖРО раствор после каждого отбора пробы воды не обновлялся, как предусмотрено ГОСТ Р 51883-2002. Необходимо заметить, что хотя определение химической устойчивости посредством выщелачивания трития из кристаллогидрата нормативными документами не регламентировано, тем не менее полученные результаты дают представление о перспективах предлагаемого способа отверждения тритийсодержащей воды. Значения удельной активности проб воды, воды в кювете с образцом (с учетом разбавления), а также количество трития, перешедшего в воду, и степень выщелачивания приведены в табл. 1.

Таблица 1

Результаты измерений активности проб воды при выщелачивании

Номер	Время выщелачивания, сутки	Удельная активность пробы воды, $Q_{пр}$, Бк/кг	Удельная активность воды над образцом, $Q_{обр}$, Бк/кг	Количество трития, перешедшего в воду, $Q_{тр}$, Бк	Степень выщелачивания трития, $Q_{тр}/Q_{\Sigma тр}$, %
1	1	$2,6 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^9$	$3,3 \cdot 10^7$	0,4
2	13	$4,4 \cdot 10^5$	$2,2 \cdot 10^9$	$4,5 \cdot 10^7$	0,6
3	37	$1,8 \cdot 10^6$	$9,0 \cdot 10^9$	$1,9 \cdot 10^8$	2,3
4	51	$1,2 \cdot 10^6$	$6,0 \cdot 10^9$	$1,2 \cdot 10^8$	1,5
5	107	$3,0 \cdot 10^5$	$1,5 \cdot 10^9$	$3,1 \cdot 10^7$	2,1

Как следует из представленных в таблице результатов, максимальное значение степени выщелачивания составило 2,3 %. Логично предположить, что на начальном этапе хранения из поверхностных слоев образца в контактную воду перешло основное количество трития и при дальнейшем хранении его выщелачивание практически приостановилось.

В литературе имеются данные по выщелачиванию трития из отходов вакуумных масел, которыми пропитаны сорбенты (NaX, NaY, АОА-1, АГ-3) в цеолитах, инкапсулированные в цементную матрицу [6, 7]. По данным этих работ, выщелачивание трития составило за 100–120 суток от 30 до 70 %. Полученные в настоящей работе результаты показали, что

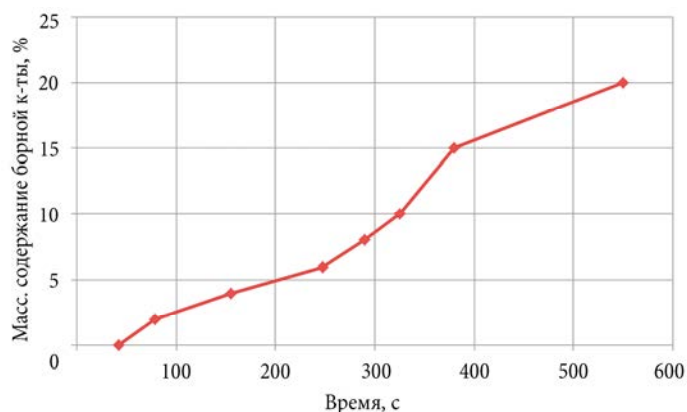
за 100–120 суток хранения выщелачивание трития из кристаллогидрата не превысит 3 %, это меньше, чем из цементной матрицы, в ~10–20 раз. Исследования химической устойчивости ГКМФ показывают хорошую перспективу для применения предлагаемого способа кондиционирования тритийсодержащей воды.

Влияние добавок на время отверждения кристаллогидрата

В ходе проведения исследований было установлено, что процесс отверждения перемешанной смеси исходных компонентов в твердую матрицу происходит за сравнительно короткий промежуток времени и длится не более одной минуты. При реализации данного способа кондиционирования тритийсодержащей воды, в случае использования большого количества материала, возникает проблема с перегревом смеси и неполной кристаллизацией, которая решается увеличением времени перемешивания исходной смеси и времени выдержки до начала кристаллизации посредством введения ингибитора.

После проведенного литературного поиска выяснилось, что для регулирования скорости отверждения СМК на основе ГКМФ возможно использование добавок боратов или борной кислоты [5]. В настоящей работе проведены исследования по влиянию добавок борной кислоты на скорость формирования кристаллогидрата.

По большинству своих физико-химических свойств тритиевая вода очень близка к дейтериевой и протиевой воде. В связи с этим, для проведения модельных испытаний [2] по отработке технологии кондиционирования тритийсодержащей воды использовался нерадиоактивный материал – дистиллированная вода. В качестве образцов было подготовлено восемь навесок смеси порошков, массой по 10 г: состоящих из 7,7 г KH_2PO_4 и 2,3 г прокаленного MgO . Далее в подготовленную смесь добавлялся порошок борной кислоты с массовым содержанием от 2 до 20 %. К полученным навескам добавлялось 3,4 мл дистиллированной воды, после чего проводилось интенсивное перемешивание до образования однородной суспензии. Затем измерялось время от момента добавления воды в исходную навеску, до момента начала кристаллизации матричного материала. Все полученные в результате проведенных экспериментов образцы визуально не отличались друг от друга – имели плотную, однородную, монолитную структуру, без



Зависимость времени отверждения от количества добавленной борной кислоты

видимых следов расслоения или трещин. Зависимость времени отверждения исходной смеси от количества добавленной борной кислоты представлена на рисунке.

В результате проведенных исследований можно сделать вывод, что добавление порошка борной кислоты в стехиометрическую смесь компонентов для получения фосфатной связки ведет к существенному (в 10 и более раз) увеличению времени начала кристаллизации монолитного материала. Борная кислота может быть использована в качестве ингибитора образования матричного материала в соответствии с требованиями применяемого технологического процесса.

Радиационная безопасность при проведении исследований

Перед началом экспериментальной части работы была поставлена задача: определить влияние на окружающую среду и персонал радиационно-опасных факторов при обращении с отвержденными ЖРО в ходе проводимых исследований радиационной стойкости и химической устойчивости ГКМФ. При проведении исследований измерялись:

- объемная активность трития в воздухе помещения и вентиляционном выбросе;
- уровень загрязненности поверхностей помещения и оборудования;
- дозы внутреннего облучения персонала.

В ходе исследований радиационной стойкости суперконтейнер, снабженный ионизационной камерой и содержащий образец, ежеквартально проверялся на загрязнение внешней поверхности, включая зону уплотнения на границе корпус–крышка. При измерениях использовался метод влажных мазков с последующим измерением активности на портативном радиометре РКБ-05П. Максимальное загрязнение внешней поверхности контейнера за весь период измерений не превышало 34 Бк/см² и соответствовало уровню загрязнения находящихся рядом с контейнером рабочих поверхностей. После проведения исследований и разборки контейнера получены следующие результаты: внутренняя поверхность контейнера – 114 Бк/см²; поверхность образца – 435 Бк/см².

Дальнейшие операции с образцом проводили в вытяжном шкафу с использованием средств индивидуальной и коллективной защиты. Результаты проведенных измерений радиационного фона рабочего помещения, оборудования и вентиляционных выбросов до (этап 1) и в процессе исследований (этап 2) приведены в табл. 2–4.

Таблица 2

Объемная активность НТ, НТО в воздухе помещения

Этап	Результаты измерений		Контрольный уровень (КОАЗ), Бк/м ³
	средняя объемная активность, Бк/м ³	максимальная объемная активность, Бк/м ³	
1	$1,0 \cdot 10^4$	$2,2 \cdot 10^4$	$3,7 \cdot 10^5$
2	$8,4 \cdot 10^3$	$6,5 \cdot 10^4$	

Таблица 3

Объемная активность НТ, НТО в вентиляционном выбросе

Этап	Результаты измерений		Контрольный уровень (КОАЗ), Бк/м ³
	средняя объемная активность, Бк/м ³	максимальная объемная активность, Бк/м ³	
1	$1,8 \cdot 10^4$	$2,1 \cdot 10^4$	$3,7 \cdot 10^7$
2	$2,0 \cdot 10^4$	$7,4 \cdot 10^4$	

Таблица 4

Поверхностное (усредненное) загрязнение помещения и оборудования

Этап	Результаты измерений		Контрольный уровень (КЗ), Бк/см ²
	среднее значение, Бк/см ³	максимальное значение активность, Бк/м ³	
1	1,6	3,8	74,0
2	1,8	5,5	

Дозы внутреннего облучения персонала во время и после проведения работ ниже чувствительности прибора. Измерения проводились на низкофоновом жидкостном сцинтилляционном альфа-бета-радиометре «TRI-CARB 3110 TR/SL». Анализ радиационной обстановки при изготовлении матричного материала, исследовании его радиационной стойкости и выщелачивания трития показал, что существенного влияния радиационно-опасных факторов на окружающую среду и персонал не происходит.

Полученные результаты могут служить основанием для оценки безопасности используемого матричного материала и принятия решения о необходимости применения дополнительных физических барьеров в процессе длительного хранения РАО.

Заключение

Полученные в настоящей работе результаты показывают хорошую перспективу для применения способа кондиционирования тритийсодержащей воды путем включения ее в состав ГКМФ. Реализация предложенного способа позволяет избежать недостатков, присущих наиболее распространенным способам кондиционирования ЖРО:

- получаемый в результате отверждения (кондиционирования) матричный материал характеризуется высоким массовым содержанием химически связанной воды (до 33 %), не растрескивается, практически не подвергается выщелачиванию и соответствует нормам (федеральным нормам и правилам в области использования атомной энергии «Критерии приемлемости радиационных отходов для захоронения» (НП-093-14), утвержденным Постановлением № 572 Ростехнадзора от 15 декабря 2014 г.):

- в процессе реализации предложенного способа не происходит образования вторичных ЖРО;

- длительность процесса химического взаимодействия предварительно подготовленных компонентов с водой, содержащей тритий, происходит в течение нескольких минут, причем время процесса можно увеличить (до 10 раз) путем использования добавок борной кислоты;

- отверждение проводится при положительной температуре, проведение процесса дополнительно не требует предварительного нагрева компонентов и последующей сушки полученного блока;

- анализ радиационной обстановки при изготовлении и обращении тритийсодержащего кристаллогидрата показал, что существенного влияния радиационно опасных факторов на окружающую среду и персонал не происходит.

Задачи, которые авторы поставили перед собой, – повышение надежности и безопасности отверждения и хранения воды, содержащей тритий, путем перевода ее в химически связанное состояние в результате проведенных работ, реализованы.

Список литературы

1. Соболев И. А., Хомчик Л. М. Обезвреживание радиоактивных отходов на централизованных пунктах. М.: Энергоатомиздат, 1983. С. 40.
2. Пат. № 2055409 РФ. кл. G21F 9/16. Способ отверждения жидких радиоактивных отходов АЭС / В. В. Проскуряков, В. П. Михайлов, Н. И. Климов и др. // Бюллетень. 1996. № 6.
3. Wagh A. S. Chemically bonded phosphate ceramics: Twenty-first century materials with diverse applications. Elsevier Ltd.: London, 2004.
4. Пат. № 2572080 РФ. кл. G21F 9/00. Способ кондиционирования донных отложений, содержащих радионуклиды / В.А. Кузов, А. М. Изместьев, В.В. Мевкус // Бюллетень. 2015. № 36.
5. Пат. № 2307411 РФ. кл. G21F 9/04. Способ стабилизации уран- и плутонийсодержащих материалов в керамикрите и кристаллический радиоактивный материал / А. С. Вэг, Д. М. Мэлони, Г. Х. Томпсон // Бюллетень. 2007. № 27.
6. Сазонов А. Б. Иммобилизация масляных тритийсодержащих отходов путем включения в цементную матрицу // Радиохимия. М., 2009. Т. 51, № 4. С. 363–365.
7. Алешина А. В. Иммобилизация масляных тритийсодержащих отходов. Полярное сияние 2009. Ядерное будущее: технологии, безопасность и экология // Тез. докл. XII Межд. молод. науч. конф. 2009. С. 21–23.

Way of Conditioning of the Water Containing Tritium

N. T. Kazakovskiy, S. E. Levakov, V. A. Korolev, D. S. Orlov, A. A. Ukhimchuk

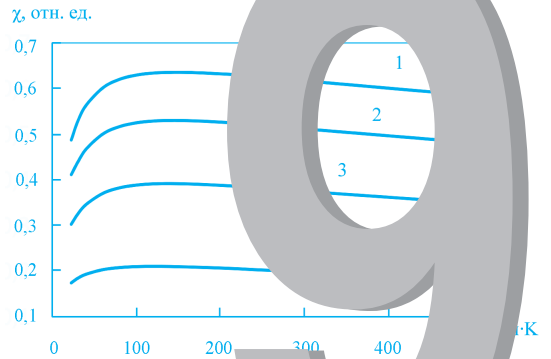
The possibility of hardening of water containing tritium, by means of its localization in matrix material on the basis of hexahydrate potassium-magnesium is tested. Researches of this material on radiation firmness and chemical stability are carried out. The results received in the work show good possibilities for application of this way of conditioning of the water containing tritium.

СОДЕРЖАНИЕ РАЗДЕЛА 9

<i>Казаковская Т. В., Белова Ю. С.</i> Сравнительное поведение церия и плутония в различных средах	68
<i>Казаковская Т. В., Шаповалов В. И., Ермичев С. Г., Матвеев В. З.</i> Уменьшение размеров и веса контейнеров для хранения и перевозки отработанного ядерного топлива путем использования материалов на основе диоксида обедненного урана	76
<i>Коршунова Т. В., Баранов Г. В., Безруков С. Г., Белов В. Ю., Дрожжин В. С., Морозова Т. А., Потемкин Г. А., Рыжов И. С.</i> Методическое обеспечение термоаналитических исследований реакционных материалов и твердых ракетных топлив	84
<i>Мокрушин В. В., Царева И. А., Забродина О. Ю., Потехин А. А., Бережко П. Г., Постников А. Ю., Чулков Д. В.</i> Масштабные факторы в анализе однородности порошковых дисперсных систем и смесей на их основе	94
<i>Сизов А. Н.</i> Влияние теплопроводности конструкционных материалов на эффективность пластинчатых радиаторов многоканальных модулей лазеров с ядерной накачкой	112
<i>Васильев А. М., Юрлов А. В., Пушкин В. А., Найданова Т. Г., Цибииков А. Н.</i> Реакция взрывчатого вещества на основе октогена и ТАТБ на динамическое нагружение методом составного стержня Гопкинсона ...	120
<i>Лукьяненко И. А., Шейков Ю. В., Вакс В. Л., Домрачева Е. Г., Яблоков А. А., Вахмистров С. А., Михайлов А. Л.</i> Использование терагерцевой спектроскопии для исследования механизмов термического разложения энергетических материалов	132
<i>Вакс В. Л., Домрачева Е. Г., Соегова Г. А., Яблоков А. А., Лукьяненко И. А., Шейков Ю. В.</i> Исследование кинетики термического разложения энергетических материалов с использованием спектроскопии высокого разрешения терагерцевого частотного диапазона	140
<i>Злобин А. М., Кирсанова Т. Е., Кащеев Д. А., Гребенникова С. Э., Шейков Ю. В., Вахмистров С. А., Сысоев Н. Я., Девяткин А. А., Пичугин А. М., Лизунов К. В.</i> Оценка констант радиолитического октогена и ТАТБ при нейтронном облучении	148
<i>Белухина П. С., Бурнашов В. А., Вахмистров С. А., Гребенникова С. Э., Мирошниченко Н. А., Шейков Ю. В.</i> Влияние размерных эффектов и структуры гексогена на его реакционную способность	158

РАЗДЕЛ

МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ



Сравнительное поведение церия и плутония в различных средах

Приводятся теоретические и экспериментальные данные по сравнительному поведению церия и плутония (в т. ч. и электрохимическому) в различных средах. Выявлена возможность получения защитных покрытий на церии.

Т. В. Казаковская, Ю. С. Белова

Общеизвестно, что плутоний (Pu) и церий (Ce) – очень необычные металлы с особыми свойствами, поэтому они интересуют многих исследователей. Ранее проводились многочисленные исследования фазовой стабильности и фазовых превращений этих металлов, их электронной структуры и динамических свойств [1–3], целый ряд работ посвящен химии плутония (актинид) [1, 4] и церия (лантанид) [3], однако электрохимическое поведение этих металлов мало исследовано. Авторам представлялось интересным сравнить особенности поведения плутония и церия в различных средах, а также оценить возможность применения на этих металлах каких-либо защитных покрытий, уменьшающих взаимодействие с окружающей средой.

Особенности поведения плутония и церия

Внешний вид металлического плутония и церия идентичен – типичные металлы с блестящей серебристой поверхностью (рис. 1, см. также цветную вкладку), которая быстро тускнеет из-за образования окислов. Однако эти металлы сильно различаются по плотности. Плотность Ce ($6,77 \text{ г/см}^3$) почти в три раза меньше, чем плотность Pu ($19,82 \text{ г/см}^3$).

Наиболее характерными особенностями для этих металлов являются высокая химическая активность и стабильная степень окисления $3+$ в растворах. Плутоний проявляет самое сложное физико-химическое поведение среди всех элементов. Чистый элемент существует в семи различных кристаллических фазах, является химически активным и образует соединения, комплексы или сплавы практически со всеми элементами.

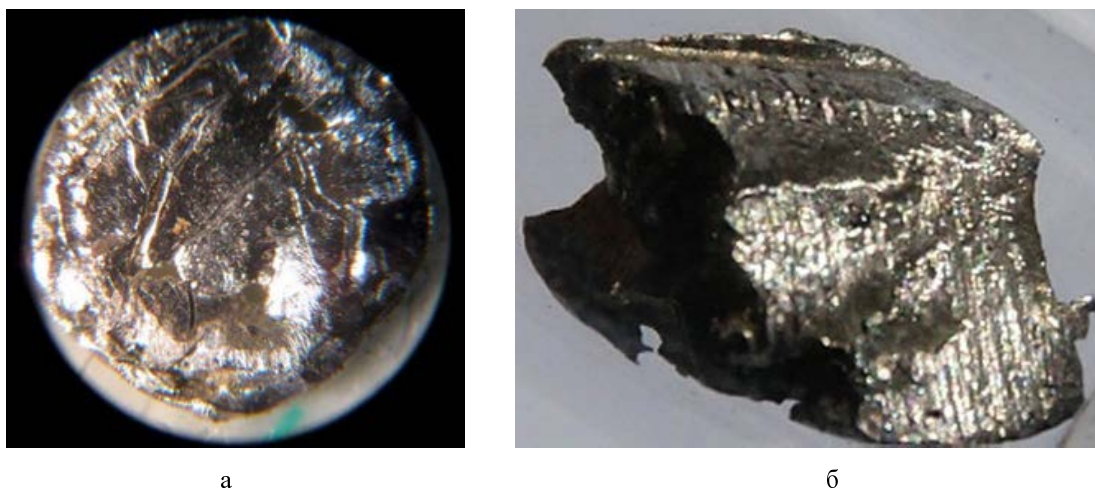


Рис. 1. Внешний вид плутония (а) и церия (б)

Церий – редкоземельный металл, обладающий уникальными свойствами, важным отличием церия от остальных лантанидов является устойчивость его высшего окисла. В этом смысле он похож на плутоний (актинид). В некоторых случаях церий используется как имитатор радиоактивных веществ.

Поведение на воздухе

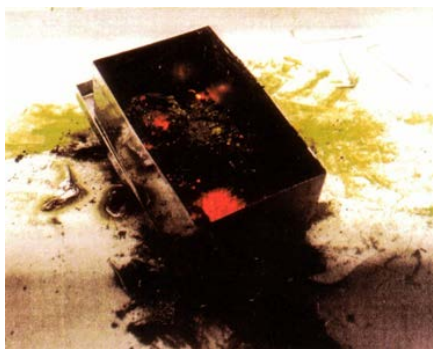
Понимание сущности процессов окисления и коррозии металлического плутония при комнатной температуре очень важно для безопасного и эффективного использования и хранения этого химически активного металла.

Как известно, очень часто используют не чистый плутоний, а плутоний-галлиевый сплав. При любых температурах во влажном воздухе скорость окисления $R_{\text{ок Pu-Ga}}$ плутоний-галлиевого сплава намного меньше скорости окисления чистого плутония $R_{\text{ок чист Pu}}$: Ga не включается в кристаллическую решетку PuO_2 , располагаясь в точках октаэдра структуры флюорита.

Во влажном аргоне скорость окисления $R_{\text{ок}}$ выше, чем во влажном воздухе. Скорость окисления δ -фазы плутоний-галлиевого сплава может сильно изменяться под действием множества параметров, включая содержание галлия и состав окислительной атмосферы (O_2 , $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$, H_2O).

Обычно окисление металлического плутония представляют следующим образом: сначала образуется полупрозрачный оксид плутония (Pu_2O_3), а затем на этот слой нарастает слой кристаллического диоксида плутония (PuO_2) до толщины в 3–5 микрон, при которой пленка начинает трескаться.

При повышенных температурах плутоний генерирует автотермическую реакцию, спонтанно воспламеняясь на воздухе, когда температура достигает 500°C (рис. 2, а).



а



б

Рис. 2. Самовоспламенение плутония (а) и церия (б) на воздухе

При температурах выше 150 °С в атмосфере, обедненной по кислороду, полуторный оксид плутония становится основной фазой.

Ce (даже компактный металл) начинает окисляться при комнатной температуре. Когда температура повышается до 300 °С, окисление на воздухе протекает настолько быстро, что может воспламениться вся масса металла (рис. 2, б), при этом выделяется значительное количество тепла, достаточное для расплавления образующейся окиси церия.

Когда Ce реагирует с O₂, на первой стадии окисления образуется окись Ce₂O₃, которая легко окисляется до двуокиси CeO₂. Продуктами коррозии церия являются гидратированные карбонаты.

Возможность нанесения защитных покрытий

В некоторых случаях для сохранения целостности образцов из Ce возникает необходимость использования защитного покрытия. Авторами были проведены испытания на устойчивость образцов, изготовленных из церия, с различными покрытиями: лаковыми двух видов (ФЛ-18 и ФЛ-582), а также гальваническим медным покрытием (рис. 3, см. также цветную вкладку).

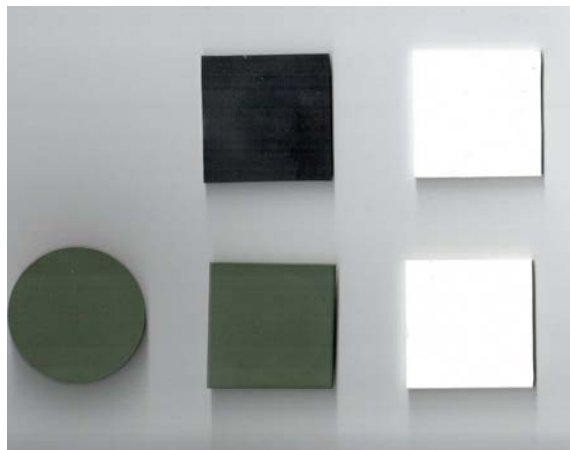


Рис. 3. Образцы из церия с нанесенным лакокрасочным покрытием

В ходе работ были разработаны режимы нанесения различных покрытий на церий, а затем проведены коррозионные испытания в воздушной среде при относительной влажности 75 %. Эксперименты продемонстрировали, что при наличии защитного покрытия устойчивость образцов церия в воздушной атмосфере при 75% относительной влажности возрастает в 4–12 раз. Что касается плутония, на данный момент попытки нанести лаковое или гальваническое покрытие на металлический плутоний не увенчались успехом.

Коррозионные испытания (комнатная температура, 75 % относительная влажность) продемонстрировали, что защитные покрытия (гальванические, лакокрасочные) увеличивают устойчивость покрытий в 4–12 раз.

Также была произведена успешная попытка сварки образцов из церия. На рис. 4 представлена микроструктура сварного соединения цериевых пластин, полученная лазерной сваркой

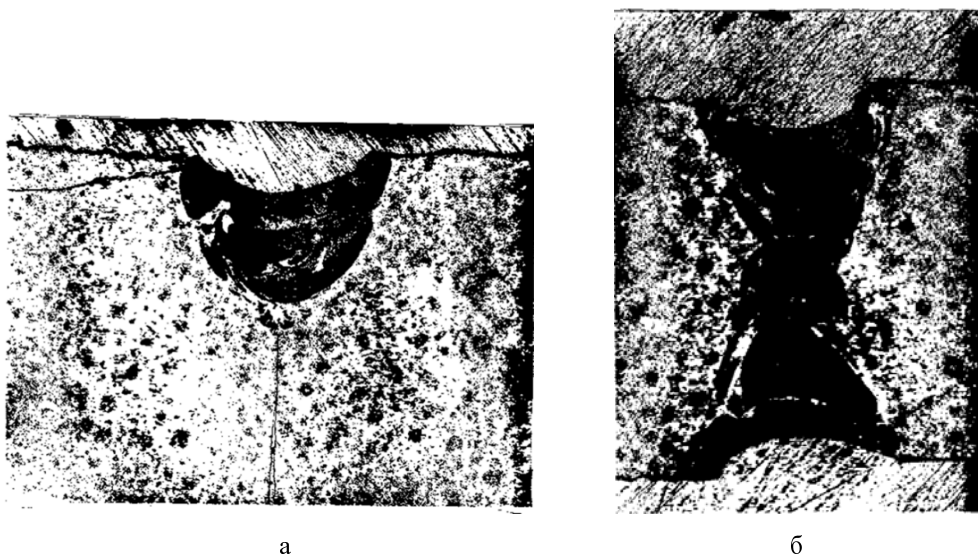


Рис. 4. Микроструктура сварного соединения цериевых пластин методом лазерной сварки:
а – с одной стороны, б – с двух сторон

Поведение в водных растворах

Очень важна оценка взаимодействия исследуемых металлов с водными растворами, в т. ч. с морской водой и электролитами на ее основе. Вследствие электроположительной природы атом плутония в водном растворе легко теряет от трех до семи внешних электронов. Химическое поведение плутония в растворе зависит от его окислительного состояния. Плутоний в четвертой степени окисления сильно гидролизует с образованием зелей или твердых коллоидов. Это коллоиды со временем стареют и растворимость уменьшается.

Плутоний может существовать в пяти валентностях. Растворы плутония различной валентности отличаются по цвету (рис. 5) (см. также цветную вкладку).



Рис. 5. Цвет различных водных растворов плутония

Церий в водных растворах также легко гидролизуеться с образованием, по-видимому, гидроксида церия. Как и у плутония, преобладающей степенью окисления церия в водных растворах является 4.

Электрохимическое поведение церия и плутония

Электрохимическое поведение исследуемых металлов изучали методом построения поляризационных кривых. В литературе практически нет данных по получению поляризационных кривых в водных растворах для Pu и Ce. Вот почему представлялось интересным сравнить электрохимическое поведение этих металлов в различных растворах.

С этой целью была предпринята попытка получить поляризационные кривые церия в пресной воде и имитаторе морской воды – 3,5 % растворе хлорида натрия. Поляризационные кривые для плутония в идентичных условиях были получены ранее. На рис. 6 представлены поляризационные кривые плутония в 3,5 % растворе хлорида натрия, на рис. 7 – поляризационные кривые двух видов церия (с оксидной пленкой и без нее), полученные в растворе того же состава.

СРАВНИТЕЛЬНОЕ ПОВЕДЕНИЕ ЦЕРИЯ И ПЛУТОНИЯ В РАЗЛИЧНЫХ СРЕДАХ

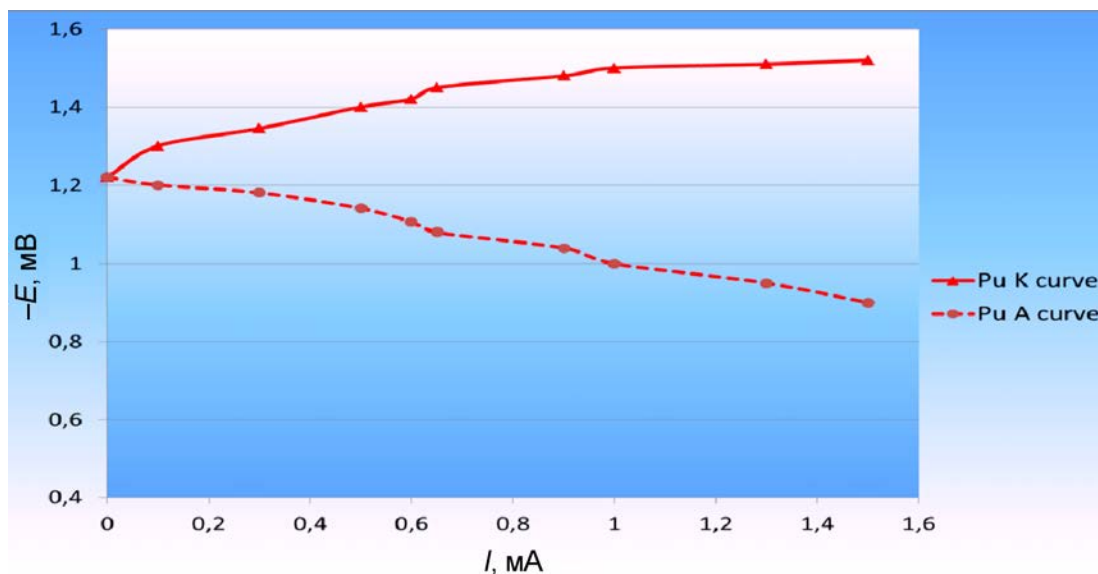


Рис. 6. Поляризационные кривые плутония в 3,5 % растворе хлорида натрия. Комнатная температура

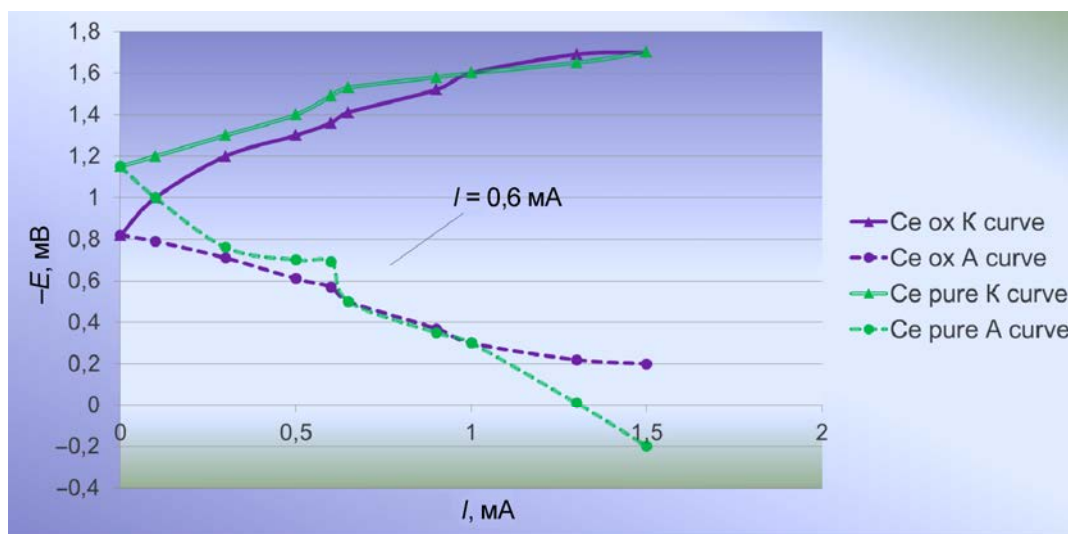


Рис. 7. Поляризационные кривые церия в 3,5 % растворе хлорида натрия. Комнатная температура

Исследования продемонстрировали, что поляризационные кривые церия и плутония в водных растворах аналогичны, что соответствует представлениям об их высокой электрохимической активности. Во всех исследуемых растворах для обоих металлов отсутствует область пассивирования. В имитаторе морской воды для образца церия с оксидной пленкой равновесный потенциал является менее отрицательным, чем для не окисленного образца, что вполне объяснимо. Потенциал чистого церия в имитаторе морской воды практически равен потенциалу плутония, что лишнее подтверждает обоснованность использования церия в качестве имитатора плутония.

Интересным явился и тот факт, что по полученным данным электрохимическая активность церия в имитаторе морской воды значительно меньше плутония, в то время как в пресной воде активность обоих металлов практически одинакова. Эти данные могут быть чрезвычайно полезны при расчетах возможной утечки радиоактивных веществ в окружающую среду при аварийном затоплении изделий с разгерметизацией узлов.

Заключение

Проведенные эксперименты подтвердили, что церий, как и плутоний, является металлом с высокой химической и электрохимической активностью.

Выявлена возможность получения на церии защитных покрытий, которые уменьшают скорость окисления на воздухе в 4–12 раз.

Результаты электрохимических исследований показали аналогичный ход поляризационных кривых для плутония и церия в имитаторе морской воды, однако необходимо проведение дальнейших экспериментов с целью выявления механизма взаимодействия исследуемых металлов с другими водными средами.

Список литературы

1. The Chemistry of Actinide and Transactinide Elements (3rd edition). Vol. 1. Springer.
2. The Chemistry of Actinide and Transactinide Elements (3rd edition). Vol. 6. Springer.
3. «Cerium» Los Alamos National Laboratory, Chemistry Division. Retrieved. December 9, 2007.
4. Плутоний. Фундаментальные проблемы. Т. 2. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2003.

Comparative Behavior of Cerium and Plutonium in Different Media

T. V. Kazakovskaya, U. S. Belova

Provides theoretical and experimental data on the comparative behavior of cerium and plutonium (including electrochemical behavior) in various media. The possibility of obtaining protective coatings on the series is revealed.

УДК 546.791.4:621.869.888

Уменьшение размеров и веса контейнеров для хранения и перевозки отработанного ядерного топлива путем использования материалов на основе диоксида обедненного урана

Т. В. Казаковская, В. И. Шаповалов,
С. Г. Ермичев, В. З. Матвеев

Рассмотрена возможность уменьшения размеров и массы контейнеров для перевозки ОЯТ при использовании новых материалов на основе диоксида обедненного урана. Показано, что использование материалов на основе обедненного урана позволит в несколько раз увеличить загрузку хранилища.

Введение

Выполнение программ, связанных с получением обогащенного урана, для применения ядерной энергии в военных и коммерческих целях привело к накоплению в мире огромного количества обедненного урана с массовым содержанием ^{235}U 0,25–0,35 %. Так, например, при прохождении одного топливного цикла в реакторе, работающем на легкой воде, наблюдаются два вида отходов: отработанное ядерное топливо (ОЯТ) и обедненный уран (ОУ или DU – deplete uranium). В качестве топлива в реакторах используют низкообогащенный уран с массовым содержанием ^{235}U в ^{238}U от 3 до 5 %. Естественный уран (0,7 % ^{235}U в ^{238}U) разделяется на низкообогащенный (3–5 % ^{235}U), который используют в качестве ядерного топлива, и обедненный, который содержит от 0,2 до 0,4 % по массе ^{235}U . При производстве одной тонны низкообогащенного ядерного топлива для реактора образуется от 5 до 7 т низкообогащенного урана.

ОУ находится, в основном, в виде высокотоксичного гексафторида (DUF_6), хранящегося в стальных емкостях на поверхности земли. Очевидна целесообразность перевода DUF_6 в более

стабильные соединения, например, оксиды. Во всем мире в настоящее время накоплено около $1,2 \cdot 10^6$ т оксидов ОУ, основные запасы которого находятся в США и России.

Пути разработки способов утилизации этих отходов могут быть следующими:

– *безопасное размещение.* ОУ является долгоживущим, химически токсичным радиоактивным (300–500 нКи/г) материалом. Размещение ОУ в хранилищах достаточно безопасно. ОУ может храниться вместе с ОЯТ, так как геохимическое поведение всех изотопов урана идентично;

– *хранилища с улучшенными характеристиками.* Использование ОУ в геологических хранилищах может улучшить характеристики хранилища, уменьшая вероятность высвобождения радионуклидов из ОЯТ в упаковках;

– *долговременная стратегия.* В настоящее время ресурсы урана достаточны, чтобы удовлетворить все потребности. Однако в будущем, возможно, возникнет необходимость перерабатывать ОЯТ и ОУ для получения ядерного топлива. Применение ОУ в упаковках для отходов ОЯТ даст возможность безопасно сохранить оба материала для будущих поколений до нужного периода времени, когда потребуются их извлечение и переработка.

Пути выгодного использования обедненного урана

Важной проблемой является поиск путей выгодного использования (утилизации) оксидов ОУ. Один из таких путей – использование диоксида ОУ в качестве материала для создания защитного техногенно-геохимического барьера при размещении радиоактивных отходов и ОЯТ в геологических горизонтах. Планируется использовать диоксид ОУ в качестве компонента радиационной защиты и природного поглотителя – сорбента радиоактивных продуктов, которые могут выделяться из контейнеров с ОЯТ при хранении их в подземных хранилищах в течение сотен тысяч лет. Если оксиды ОУ существенно замедляют перенос радионуклидов и продуктов распада, особенно долгоживущих ^{237}Np и ^{99}Tc , в биосферу, это значительно повысит безопасность хранилища [1].

Кроме того, многообещающим является путь изготовления контейнеров для ОЯТ, используя материалы, изготовленные на основе обедненного диоксида урана.

Материалы на основе обедненного урана

Материалы на основе ОУ позволяют:

- уменьшить выход радионуклидов из контейнеров;
- снизить вероятность возникновения критических ситуаций в ядерных хранилищах;
- обеспечить радиационную защиту.

Оксиды ОУ могут использоваться в качестве:

– компонента металлокерамики (CERMET диоксид ОУ – сталь), которая заменяет стальные детали в контейнере;

– заполнителя специального бетона (DUAGG и DUCRETE), который может использоваться как конструкционный и защитный материал в контейнерах для транспортирования/хранения ОЯТ и радиоактивных отходов;

- сыпучего связующего для заполнения пор внутри упаковки.

Кермет

Кермет представляет собой компаунд, полученный путем внедрения керамических частиц ОУ в стальную матрицу. Керамика в металлической матрице обладает преимуществами обоих материалов: защита от гамма-радиации, замедление абсорбции нейтронов, удаление тепла от радиоактивного распада (рис. 1).

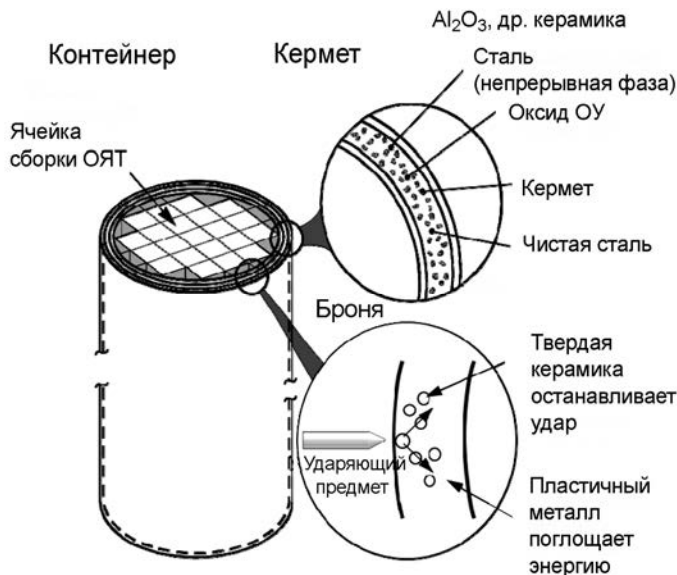


Рис. 1. Схема контейнера из кермета

Преимущества использования кермета очевидны:

- хорошая защита от гамма-радиации вследствие высокой плотности диоксида урана, замедление и абсорбция нейтронов;
- высокая защита от атаки в сравнении с обычной броней: твердая керамика из диоксида урана (рис. 2) останавливает удар, а пластичный металл поглощает энергию;
- при радиоактивном распаде тепло быстро отводится из-за высокой проводимости стальной массы.

На рис. 2 показаны спеченные гранулы диоксида ОУ, полученные во ВНИИХТ, которые являются основной составной частью кермета.

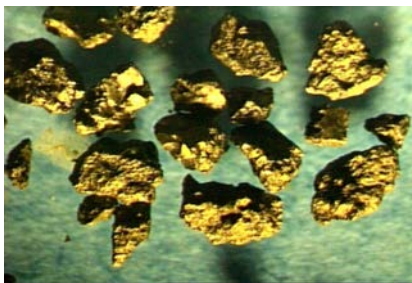


Рис. 2. Спеченные гранулы диоксида урана – составная часть кермета

DUAGG и DUCRETE

Специальный бетон (DUCRETE) может использоваться как конструкционный и защитный материал в металлобетонных контейнерах для транспортирования и хранения ОЯТ и высокорadioактивных отходов.

Новый вид бетона состоит из керамики на основе ОУ (DUAGG), которая заменяет традиционный наполнитель. Брикеты прессуются, подвергаются спеканию в жидкой фазе и перемалываются (рис. 3, 4). Затем DUAGG перемешивают с портланд-цементом, песком и водой, как при производстве обычного бетона. Эта композиция (DUCRETE) включает и тяжелые элементы (которые снижают гамма-облучение), и легкие элементы для уменьшения нейтронного облучения. Плотность DUAGG достаточно высока ($\rho \sim 10 \text{ г/см}^3$). Теоретическая плотность DUCRETE может превысить 7 г/см^3 , что в $\sim 1,7$ выше, чем плотность специальных бетонов, используемых в настоящее время для производства контейнеров (рис. 5).

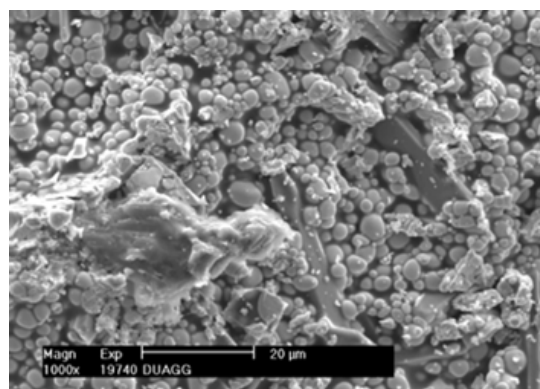


Рис. 3. DUAGG – стабилизированные DU агрегаты, спеченные с базальтом

Рис. 4. DUAGG перед испытаниями (SEM). Содержит частицы DUO_2 , спеченные с базальтом

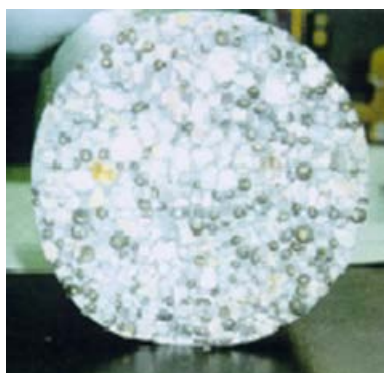


Рис. 5. Тяжелый (специальный) бетон со стальной дробью и сульфатом бария

Более эффективные защитные характеристики нового материала дают возможность использовать меньшую толщину защиты в контейнерах для ОЯТ, что приведет к уменьшению габаритов (в ~1,5 раза) и массы (на ~35 т).

Сравнение обычных контейнеров и контейнеров из материалов на основе обедненного урана

Контейнеры нового поколения для хранения и перевозки ОЯТ должны соответствовать следующим требованиям:

- увеличение скорости охлаждения;
- физическая защита от террористического нападения;
- уменьшенные размер и вес.

Было проведено сравнительное исследование размеров и веса традиционных контейнеров и контейнеров, изготовленных из материалов на основе ОУ.

При расчетах использовали программу SCALE 4.4a Code.

Использование кермета

В качестве эталона использовали стальные контейнеры для хранения и перевозки системы HI-STAR 100 на 24 сборки ОЯТ. Сравнились радиус и масса, при этом поверхностную дозу радиации принимали одинаковой для контейнеров из кермета и традиционных контейнеров (рис. 6 и табл. 1).

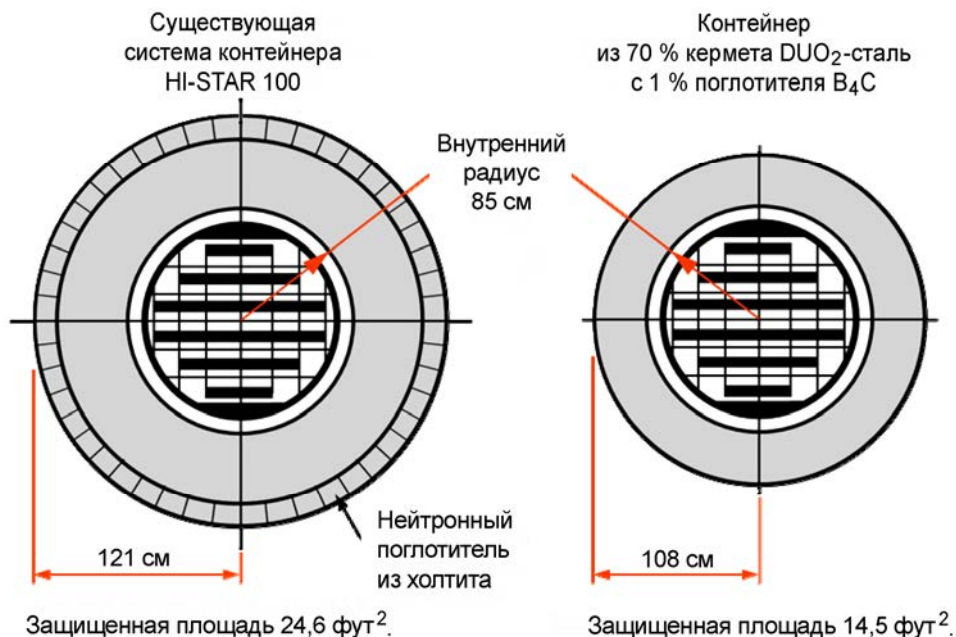


Рис. 6. Схема традиционного контейнера на 24 сборки ОЯТ и контейнера из кермета на 24 сборки

Таблица 1

Уменьшение веса и радиуса контейнера из кермета

Вид контейнера	Внешний радиус, м	Вес, т
Многоцелевой контейнер на 24 сборки ОЯТ	1,21	77
Контейнер из кермета	1,13	61

Получено, что при 70 % содержании DUO_2 в кермете внешний радиус в контейнере снижается на 5,8 %, а масса уменьшается на 16,5 %.

Использование DUCRETE

Расчеты были сделаны для стандартного бетонного контейнера для ОЯТ на 32 ОЯТ сборки в сравнении с контейнером из DUCRETE на такое же количество сборок. Как и в случае с использованием кермета, сравнивали радиус и вес, принимая поверхностную дозу радиации одинаковой для обоих контейнеров (табл. 2 и рис. 7)

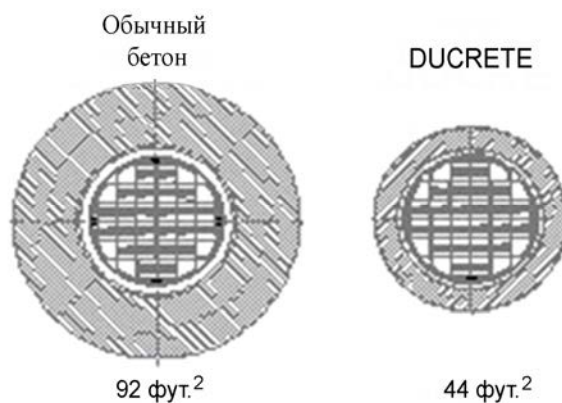


Рис. 7. Схема традиционного бетонного контейнера на 32 сборки ОЯТ и контейнера из DUCRETE на 32 сборки (поперечное сечение)

Таблица 2

Уменьшение веса и радиуса контейнера из DUCRETE

Вид контейнера	Внешний радиус, м	Вес, т
Бетонный контейнер	169	111
Контейнер из DUCRETE	119	76

Было рассчитано, что контейнеры из материала DUCRETE на 35 т легче и на 100 см меньше в диаметре, чем контейнеры из обычного бетона. Более эффективные защитные характеристики нового материала дают возможность использовать меньшую толщину защиты в контейнерах для ОЯТ, что приведет к уменьшению габаритов (в ~1,5 раза) и массы (на ~35 т). Уменьшение размеров и снижение массы позволит перевозить контейнеры нового поколения железнодорожным

транспортом. Контейнеры на основе DUCRETE имеют более высокую теплоемкость нагрузки из-за уменьшенной толщины стенки.

Заключение

По сравнению с обычным стальным контейнером на 24 сборки ОЯТ контейнер из кермета будет на 16 т легче и иметь меньший диаметр (2,26 м вместо 2,42 м).

Диаметр контейнера из DUCRETE (по сравнению с обычным бетонным контейнером на 32 сборки) уменьшится с 3,38 до 2,38 м, при этом контейнер будет легче на 35 т.

России требуется 220 контейнеров для перевозки и 2500 контейнеров для хранения. Использование диоксида ОУ в качестве материала для контейнеров позволит практически полностью потребить все запасы избыточного ОУ, т. е. выгодно их утилизировать и существенно повысить безопасность хранения ядерных отходов.

Список литературы

1. Kazakovskaya T. V. et al. Sorption of Long-Lived Radioisotopes in Geological Repository Underground Waters by Depleted Uranium Oxides // 10th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, Glasgow, Scotland, September 4–8, 2005.

Size and Weight Reducing of Storage and Transport Containers for Spent Nuclear Fuel by Using Materials Based on Depleted Uranium Dioxide

T. V. Kazakovskaya, V. I. Shapovalov, S. G. Ermichev, V. Z. Matveev

Considers the possibility of reducing the size and weight of containers for the transportation of spent nuclear fuel when using new materials based on depleted uranium dioxide. It is shown that the use of materials based on depleted uranium will increase the repository capacity several times.

Методическое обеспечение термоаналитических исследований реакционных материалов и твердых ракетных топлив

Т. В. Коршунова, Г. В. Баранов,
С. Г. Безруков, В. Ю. Белов, В. С. Дрожжин,
Т. А. Морозова, Г. А. Потемкин,
И. С. Рыжов

Демонстрируются возможности комплекса методов термического анализа, таких как термогравиметрия (ТГА), дифференциальный термический анализ (ДТА) и термомасс-спектрометрический (ТМС) анализ выделившегося газа, для изучения реакционных материалов (РМ) и компонентов твердых ракетных топлив (РТТ). Исследование данных материалов в рамках единого комплекса методов обусловлено общностью их физико-химических свойств, таких как способность к экзотермическому превращению с выделением газовой фазы, наличие неорганических горючих компонентов (порошков W, В, Al) и др. С целью прогнозирования поведения указанных материалов в условиях пожара проведены расчеты и получены условия воспламенения для модельных систем цилиндрической формы различного диаметра.

Введение

В качестве объектов исследования в работе рассматривались следующие материалы, используемые в конструкции различных видов ракетно-артиллерийского вооружения [1]:

1) реакционный материал 07РМ02, представляющий собой металл-фторопластовый композит, получаемый холодным прессованием и последующим спеканием однородной порошкообразной смеси, содержащей W, Al и фторопласт. Одна из модификаций данного материала была разработана, в частности, для модернизации пуля калибра 7,62×54 мм (рис. 1) в интересах АО «Концерн «Калашников»»;



Рис. 1. Пули калибра 7,62×54 мм, изготовленные с применением материала 07PM02M

2) порошок аморфного бора, полученный на АО «Авиабор», с размером частиц 0,02–2 мкм; при этом частицы образуют конгломераты, некоторые из которых достигают размера ~100 мкм.

Методы исследований и экспериментальное оборудование

Методические подходы к исследованиям базируются как на экспериментальных методах – термическом и масс-спектрометрическом анализе, оперирующих с миллиграммовыми количествами и раскрывающих природу физико-химических процессов, которые протекают в материалах при нагревании, так и на расчетных методах, позволяющих моделировать поведение этих материалов при пожаре в составе ответственных конструкций и их отдельных узлов.

Исследование поведения материалов при высокотемпературных воздействиях проводится совмещенным методом ТГА-ДТА на термоанализаторе SETARAM с измерительной ячейкой «rod 92-1600-TG-DTA 1600 °C». Погрешность термоанализатора по измерению массы равна $\pm 10^{-6}$ г, по измерению температуры – $\pm 0,5$ °C; энергетическая чувствительность составляет 100 мкВт. По зарегистрированным в опытах термограммам определяются термическая стойкость и пожароопасность исследуемых материалов, для чего используются как стандартные методики термического анализа [2, 3] (international standart ISO 11357-3-99. Plastics. Differential Scanning Calorimetry (DSC). P. 3; international standart ISO 11358-3-97. Plastics. Thermogravimetry (TG) of polymers. General principles), так и собственные методические разработки авторов [4, 5].

Наряду с определением термостойкости и пожароопасности исследуемых энергетических материалов методы термического анализа могут быть использованы для определения содержания и однородности распределения неорганического наполнителя в этих материалах [6, 7].

Масс-спектрометрический анализ выделившегося газа проводится на автоматизированном комплексе газоаналитических исследований АГКШ-01. Основой комплекса является квадрупольный масс-спектрометр КМС-01/250, имеющий диапазон регистрируемых масс от 1 до 250 а.е.м. и обеспечивающий чувствительность по Ar 10^{-12} Па. Комплекс дополнен модулем газового обеспечения для ввода газовых проб, а также пиролитической приставкой, позволяющей проводить анализ твердых и жидких образцов, претерпевающих физико-химические превращения с выделением газовой фазы при нагревании до 1000 °C.

Обработка полученных термоаналитических данных при помощи современных цифровых устройств позволяет описывать кинетику изучаемых процессов, которая, в свою очередь, дает возможность прогнозировать ряд свойств веществ в различных условиях, в т. ч. в таких, для которых сбор экспериментальных данных крайне сложен. С этой целью используется программный комплекс «AKTS–Thermokinetics» в конфигурации «Thermokinetics (Термокинетика) + Thermal Safety (Термобезопасность)».

Для успешного моделирования процесса необходимы корректные значения кинетических характеристик, которые можно получить путем обработки ТГ-ДТА/ДСК зависимостей при помощи пакета «AKTS–Thermokinetics». В данной работе для расчета кинетических параметров использовался дифференциальный изоконверсионный метод Фридмана [8], широко применяющийся для описания термокинетики многостадийных процессов. По результатам ТГ-ДТА анализа рассчитываются зависимости энергии активации E_α процесса от степени превращения (α), которая изменяется в пределах от 0 до некоторого конечного значения, которое при полном превращении равно 1.

Полученные кинетические характеристики вводятся в качестве исходных данных в программу «AKTS – Thermal Safety», которая позволяет предсказать аккумуляцию тепла и развитие реакции при любых температурных условиях окружающей среды. Программа включает в себя расчеты распространения тепла и распределения температурных полей в крупногабаритных объектах, при этом учитывается выделение тепла, обусловленное протеканием физико-химических превращений. По результатам расчетов оценивается тепловая и пожарная безопасность различных технологических процессов, материалов и конструкций, в которых они используются.

Важнейшим итогом использования данной программы является переход от результатов термоаналитических экспериментов с пробами материалов (в нашем случае, РМ и компонентов ТРТ) массой в несколько миллиграмм к изучению поведения тех же материалов массой в несколько килограмм или даже тонн.

Результаты и их обсуждение

Реакционный материал 07PM02

Для термоаналитического исследования процесса терморазложения материала 07PM02 опыты проводились в средах аргона и воздуха. В процессе проведения опыта проба материала массой 30–80 мг нагревалась со скоростью 10 °С/мин от температуры окружающей среды, равной 20–25 °С, до конечной температуры опыта, которая при исследовании 07PM02 составляла 800 °С.

Результаты термического анализа реакционного материала 07PM02, представленные на рис. 2, 3, показывают, что общим в поведении материала при нагревании в инертной атмосфере аргона и воздухе является следующее:

– плавление кристаллической фракции фторопласта происходит до начала физико-химических превращений РМ. Измеренное значение температуры плавления равно 320,7–322,1 °С, удельная величина теплового эффекта плавления составляет в среднем 2,6 Дж/г;

– физико-химические превращения материала независимо от наличия кислорода в газовой атмосфере начинаются при температуре ~ 440 °С, из чего можно сделать вывод, что инициатором химической реакции являются именно собственный окислитель – фторопласт – и продукты его терморазложения.

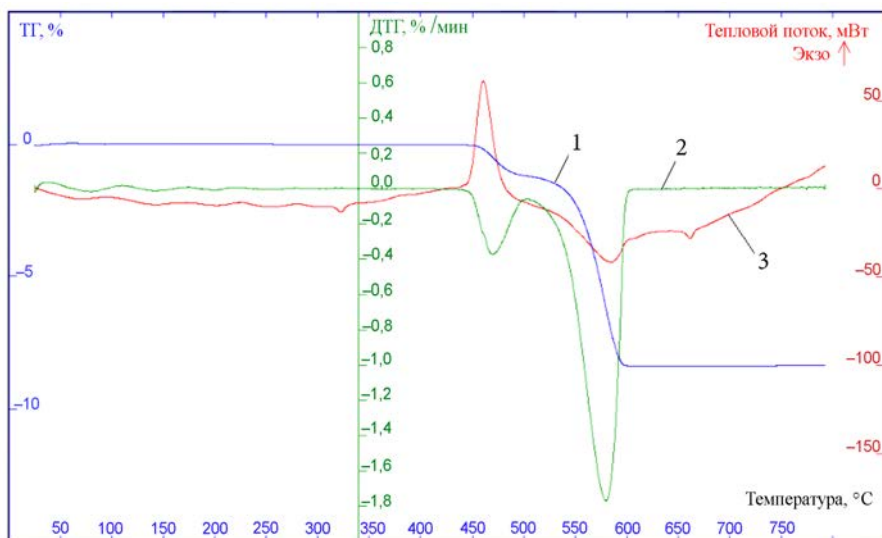


Рис. 2. Термограмма материала 07PM02 в атмосфере аргона (1 – ТГ-кривая; 2 – ДТГ-кривая; 3 – ДТА-кривая)

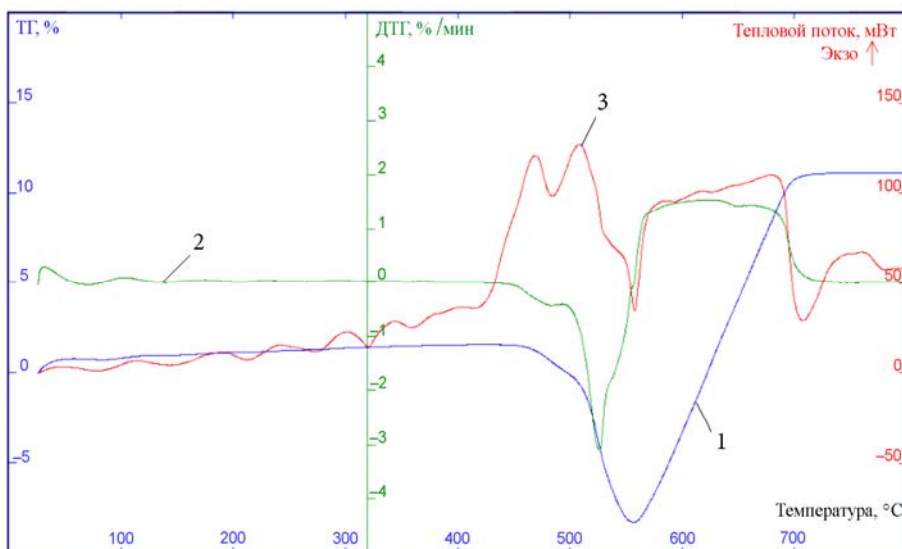


Рис. 3. Термограмма материала 07PM02 в атмосфере воздуха (1 – ТГ-кривая; 2 – ДТГ-кривая; 3 – ДТА-кривая)

За исключением вышеперечисленного, в остальном поведение РМ при нагревании в атмосфере аргона и воздухе кардинально отличается:

– при нагревании РМ в воздухе компоненты металлического наполнителя (вольфрам и алюминий) полностью окисляются, на что в совокупности указывают выход ТГ-кривой на плато при температуре $\sim 700^\circ\text{C}$ и отсутствие эндотермического пика плавления свободного алюминия на ДТА-кривой. Процесс окисления наполнителя имеет ярко выраженную экзотермичность; величина удельного тепловыделения достигает 1211–1515 Дж/г.

– при нагревании РМ в атмосфере аргона такой выраженной экзотермичности процесса, как в воздушной среде, не наблюдается, что обусловлено недостаточным количеством «собственного» окислителя для окисления металлического наполнителя. Подтверждением тому является эндотермический пик плавления свободного непрореагировавшего алюминия, зарегистрированный на ДТА-кривой (см. рис. 2). Согласно проведенным расчетам, количество свободного алюминия составляет 0,5 мг, т. е. почти половина от того количества, которое содержится в материале согласно рецептуре.

Таким образом, сравнение тепловых эффектов окисления на воздухе и в инертной атмосфере показывает, что на эффективность действия реакционного материала 07PM02, заключающегося, в частности, в получении дополнительного энерговыделения, существенно влияет наличие «внешнего» окислителя.

Для определения состава газовой фазы, выделяющейся при нагревании 07PM02, материал был подвергнут ТМС исследованиям на комплексе АГКШ-01.

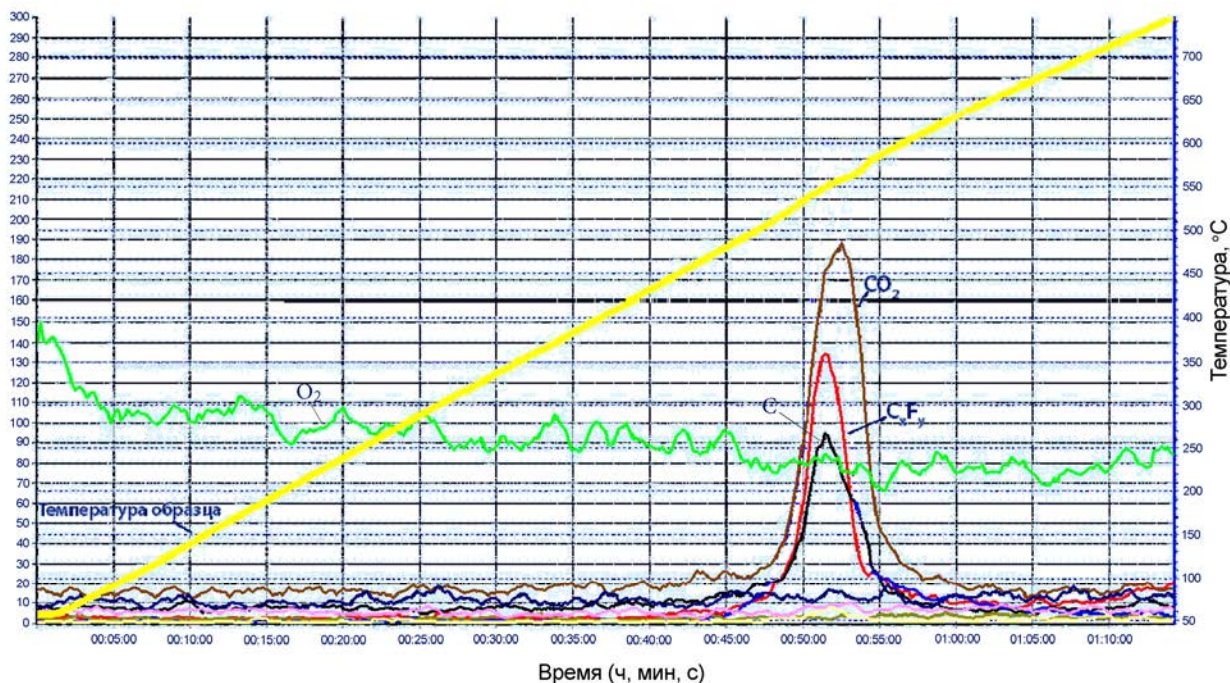


Рис. 4. Интенсивность выделения газообразных веществ из материала 07PM02 при нагревании в атмосфере воздуха

Полученные результаты, представленные на рис. 4 (см. также цветную вкладку), показывают, что максимальное газовыделение при нагревании РМ в воздушной атмосфере происходит при температуре ~ 550 °С, что хорошо соотносится с данными по потере массы (см. рис. 3), при этом основными компонентами образующейся газовой фазы являются продукты разложения фторопласта (C_xF_y) и их дальнейшего окисления (CO_2). Отсутствие в масс-спектрах пиков, характерных для фтора, свидетельствует о его взаимодействии с металлическим наполнителем.

Порошок аморфного бора

Термоаналитические исследования порошка аморфного бора проводились в среде воздуха в температурном интервале (25–1200 °С) со скоростями нагрева 5, 10 и 15 °С/мин.

Полученные данные обрабатывались в программе «AKTS–Thermokinetics» для получения кинетических параметров, которые использовались для прогнозирования поведения аморфного бора в условиях пожара с применением программы «AKTS–Thermal Safety». Расчеты выполнялись для модельных систем цилиндрической формы и разных диаметров, при этом в качестве входных параметров использовались кинетические характеристики, полученные в ходе ТГ-ДТА экспериментов на малых ~ 10 мг пробах.

В качестве параметра, характеризующего поведение энергетического материала, было выбрано время воспламенения τ_i цилиндрического образца, моделирующего твердотопливный ускоритель снаряда (ракеты), помещенного в высокотемпературную среду пожара. Кроме того, рассчитывалась критическая температура теплового взрыва T_{sadt} образца материала, также имеющего цилиндрическую форму.

Для исследования влияния диаметра образца, наличия или отсутствия внешней теплоизолирующей оболочки и величины внешней температуры на время воспламенения τ_i и критическую температуру T_{sadt} были проведены расчеты для образцов диаметром 50, 100, 250 и 500 мм без внешней оболочки и с оболочкой толщиной 10 мм. В качестве материала оболочки был выбран асбест, с характеристиками: $\lambda = 0,16$ Вт/м/К, $\rho = 0,47$ г/см³, $C_p = 1,1$ Дж/г/К [9]. Характеристики компактного аморфного бора: $\lambda = 13,7$ Вт/м/К, $\rho = 2,34$ г/см³, $C_p = 1,11$ Дж/г/К [9]. Так как для исследований использовался аморфный бор, его теплопроводность в составе крупногабаритного образца цилиндрической формы была рассчитана по формуле Эйкена [10]. При расчетах также было принято, что материал имеет пористость 0,5 и диффузия воздуха в порах образца не лимитирует процесс окисления.

Результаты расчетов τ_i представлены на рис. 5, 6 (оба рисунка см. также в цветной вкладке).

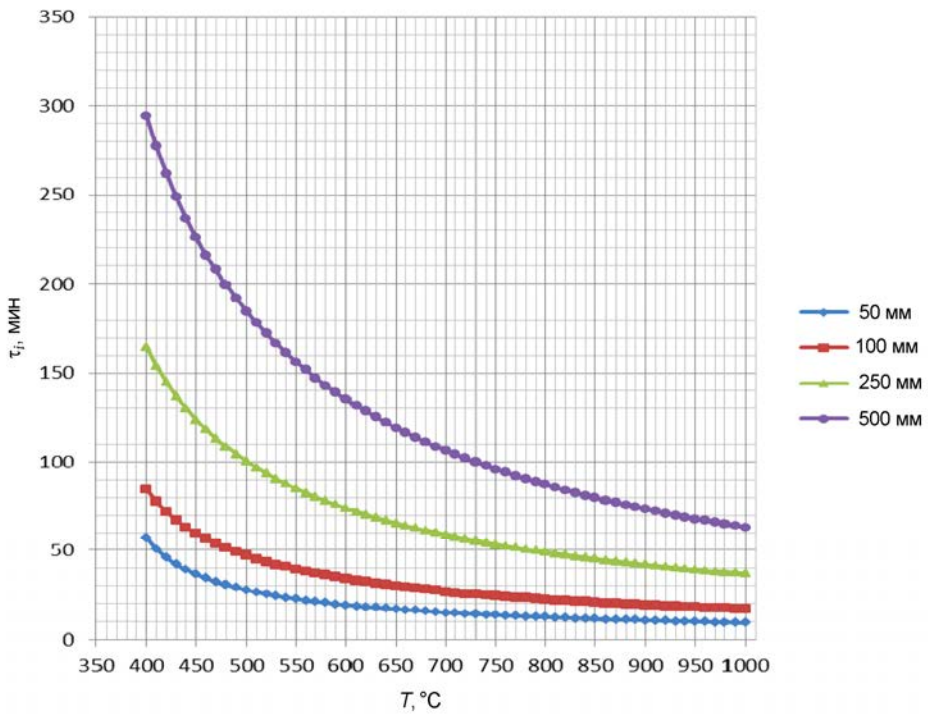


Рис. 5. Расчетные зависимости времени воспламенения τ_i от внешней температуры T для цилиндрических образцов различного диаметра (без оболочки)

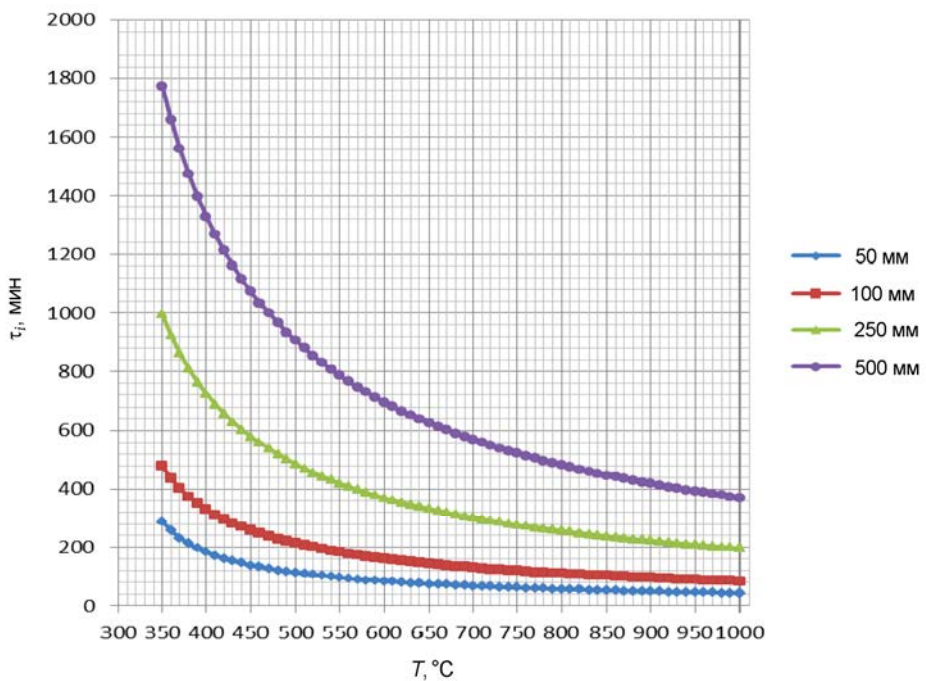


Рис. 6. Расчетные зависимости времени воспламенения τ_i от внешней температуры T для различного диаметра образца (с оболочкой из асбеста $h = 10$ мм)

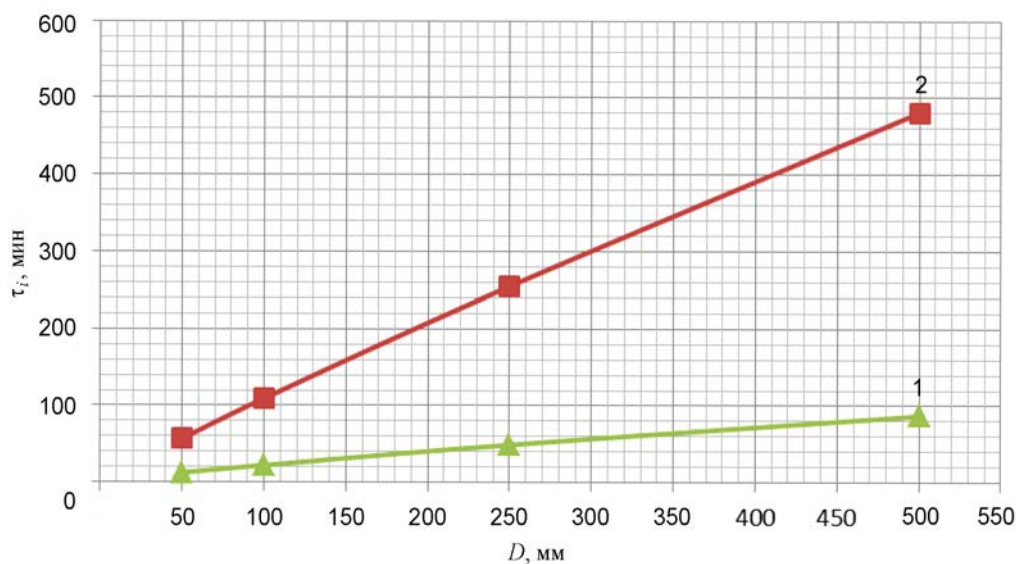


Рис. 7. Расчетные зависимости времени воспламенения τ_i от диаметра образца D при температуре внешней среды $T = 800$ °С (норма МАГАТЭ) для образцов без оболочки (1) и с оболочкой из асбеста (2)

Представленные зависимости демонстрируют возможность использования результатов ТГ-ДТА-анализа, полученных на образцах 5–10 мг (диаметром 2,5 мм), для прогнозирования поведения реальных (крупногабаритных) образцов в условиях пожара.

Заключение

1. Продемонстрированы возможности и практическое значение комплекса методов термического анализа (ТГА, ДТА, ТМС) для изучения свойств РМ и компонентов ТРТ на примере металл-фторопластового реакционного материала 07РМ02 и аморфного бора.

2. Проведены расчеты, прогнозирующие поведение модельных систем в условиях пожара, при этом в качестве входных параметров для расчетов использовались кинетические характеристики, полученные обработкой результатов ТГ-ДТА экспериментов, выполненных на малых (~10 мг) пробах материалов.

Авторы выражают благодарность А. А. Дорофееву, А. А. Аушеву и О. И. Дегтяревой за содействие в проведении исследований.

Список литературы

1. Пат. № 2534533 РФ, МПК С02К9/00. Окислитель и ракетное топливо с ним / Н. Е. Староверов // Бюллетень. 2014. № 33.
2. Уэндландт У. Термические методы анализа. М.: Мир, 1978.

3. Handbook of Thermal Analysis and Calorimetry, Vol. 1, Principles and Practice. Elsevier Science, 1998.

4. Потемкин Г. А., Коршунова Т. В., Морозова Т. А. Атлас-справочник по термическому анализу материалов. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2019.

5. Пат. 2617730 РФ МПК G01N25/50. Способ анализа вещества термоаналитическим методом / Г. А. Потемкин, Т. А. Морозова, Т. В. Коршунова // Бюллетень. 2017. № 12.

6. Потемкин Г. А., Морозова Т. А. АОД 60.285. Полимерные композиты. Методика измерения массовой доли и однородности распределения наполнителя термогравиметрическим методом. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2014.

7. Пат. 2488101 РФ МПК G01N25/00. Способ определения содержания наполнителя в полимерных композитах / Г. А. Потемкин, А. В. Анисин, А. А. Дорофеев и др. // Бюл. 2013. № 20.

8. Roduit B., Borgeat Ch., Lunghi A. et al. Advanced Kinetics Tools for the Evaluation of Decomposition Reactions // Journal of Thermal Analysis and Calorimetry. 2005. Vol. 80. С. 229–236.

9. Физические величины: Справочник / Под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991.

10. Чейлытко А. А. Исследование влияния пор на теплопроводность материалов // Технологический аудит и резервы производства. 2013. № 2/2 (10). С. 14–17.

Thermoanalytical Study of Reactionary Materials and Rocket Solid Fuels: Techniques and Facilities

**T. V. Korshunova, G. V. Baranov, S. G. Bezrukov, V. Yu. Belov, V. S. Drozhzhin,
T. A. Morozova, G. A. Potemkin, I. S. Ryzhov**

The potential of thermoanalytical methods set including thermogravimetry (TG), differential thermal analysis (DTA) and evolving gas thermal mass spectrometric (TMS) analysis as tools for study of reactionary materials (RM) and rocket solid fuels (RSF) components is presented in this paper. These materials are investigated in the same ways because of their similar physical and chemical properties such as ability to exothermal conversion with gas release, inorganic fuel components presence (powders of W, B, Al) etc. For the prediction of the materials fire behavior the initial conditions of ignition for model systems with cylindrical form and different diameters were calculated.

УДК 543.08

Масштабные факторы в анализе однородности порошковых дисперсных систем и смесей на их основе

**В. В. Мокрушин, И. А. Царева,
О. Ю. Забродина, А. А. Потехин,
П. Г. Бережко, А. Ю. Постников,
Д. В. Чулков**

Одной из важнейших задач в сфере изготовления и использования порошковых материалов и их смесей является контроль однородности с помощью которого можно судить, например, о качестве перемешивания или об оптимальности выбора его режимов. При этом ключевое значение имеют масштабные факторы, относящиеся как к методу анализа (размер аналитического объема, размер области возбуждения аналитического сигнала), так и к объекту анализа (размер минимальной представительной пробы). Неопределенность соотношения между указанными параметрами приводит к недоверчивым результатам в оценке однородности. Кроме того, порошковые дисперсные системы и их смеси относятся к заведомо неоднородным, фрактальным системам, все свойства которых зависят от масштаба рассмотрения. Масштабным фактором, который характеризует переход от однородного к неоднородному поведению свойств системы, является радиус (длина)

корреляции. В анализе однородности химического состава это минимальный размер области возбуждения аналитического сигнала, выше которого химический состав не зависит от количества вещества, а ниже – проявляется зависимость химического состава не только от размера, но и от координат области его возбуждения. Определение понятий и измерение величин масштабных факторов однородности не только устраняют неопределенность влияния количества вещества на результат анализа, но и позволяют установить тонкие различия в микро-неоднородности порошковых дисперсных систем, во многом определяющие их свойства и поведение.

Процесс перемешивания порошковых материалов для любого практического применения получаемой механической смеси сводится к взаимному механическому перемещению и перераспределению друг относительно друга частиц двух или нескольких различных твердых фаз и имеет целью получение композиционного материала с относительно равномерным распределением частиц, а, следовательно, и более близкими свойствами в любой из частей получаемой смеси [1]. Достижение идеальной равномерности распределения компонентов при смешении порошковых материалов невозможно не только в технологическом смысле, но и в принципе, так как по определению и физическому состоянию порошковые материалы и их смеси в полной мере относятся

к понятию «дисперсные системы» [2], которые, в свою очередь, являются системами гетерогенными. К гетерогенным системам, как неоднородным по определению, термины «гомогенность» и «гомогенизация» [1] для обозначения качества перемешивания и процесса его улучшения не пригодны, во всяком случае, без использования кавычек. Под устоявшимся термином «однородность» следует понимать статистическую равномерность распределения фаз в объеме гетерогенных систем. Контроль равномерности распределения компонентов (фаз), входящих в их состав, является очень важной задачей в материаловедении, так как с его помощью можно судить о качестве перемешивания, оптимальности выбора его режимов. Хорошо перемешанной должна считаться та порошковая композиция, в которой все частицы смеси распределены по объему статистически равномерно [1]. При этом следует отличать понятия «качество перемешивания» и «качество смеси». Качество перемешивания определяется только химической однородностью или равномерностью распределения компонентов. Понятие качества смесей всегда трактуется в более широком смысле их изготовителями или потребителями по каким-либо эксплуатационным, технологическим и иным свойствам в соответствии с функциональным назначением.

Для порошковых смесей целесообразен ввод понятия достаточной однородности, т. е. такой степени перемешивания, которая удовлетворяет требованиям, вытекающим из условий дальнейшего использования приготовленной смеси [1]. В контексте статьи мы будем говорить только о химической однородности, которая однозначно характеризует качество перемешивания порошковых механических смесей [1] и определяется статистической равномерностью распределения компонентов. Например, в работе [3] для оценки качества смешения многокомпонентных порошковых композиций применяется коэффициент вариации K_{var} , используемый в математической статистике для определения величины рассеяния (дисперсии) измерений и представляющий собой отношение среднего квадратичного отклонения (СКО) σ_n содержания определяемого ключевого компонента к его рецептурному или среднестатистическому содержанию в образце

$$C_0: K_{var} = \frac{100 \times \sigma_n}{C_0}, \%$$

В качестве ключевого, как правило, имеют в виду компонент с наименьшим содержанием по массе или который определяет специальное функциональное свойство смеси [3].

В описании ГОСТ 8.531-2002 «Стандартные образцы состава монолитных и дисперсных материалов. Способы оценки однородности» в качестве характеристики однородности используется СКО содержания аттестуемого компонента, определяемого по нескольким пробам, взятым от всей массы исследуемого экземпляра дисперсного материала. При этом различают понятия макро- и микронеоднородности. Макронеоднородность – составляющая погрешности (разброса), обусловленная неоднородностью для частей образца материала, сумма масс которых равна массе экземпляра материала. Микронеоднородность – составляющая погрешности, обусловленная неоднородностью для частей материала, сумма масс которых равна массе аналитического объема. Под аналитическим объемом, как правило, понимают объем вещества, достаточный для проведения одного или нескольких измерений в используемом для анализа методе или методике (см. ГОСТ 8.531-2002). В этих определениях содержится упоминание о двух масштабных факторах однородности. Первый, начиная от самого крупного масштаба, – это экземпляр смеси, к которому в общепринятом смысле относится единичный объем изготовления (технологическая загрузка, партия) или хранения (тара). Второй – это аналитический объем. В данном случае не имеется в виду объем как конкретный размерный физический параметр, а подразумевается выборка от материала – образец или проба.

Очевидно, что значения статистических показателей равномерности распределения компонентов порошковых смесей в процессе перемешивания уменьшаются до определенных пределов,

и это указывает на то, что химическая однородность увеличивается, а качество перемешивания улучшается [4]. Идеальное качество перемешивания для гетерогенных систем – смысловой нонсенс, и актуальным является вопрос о максимально достижимой однородности. Все вещества окружающей материи неоднородны. Важен масштаб рассмотрения, на котором их неоднородность проявляется. Для веществ и материалов, которые принято считать гомогенными, неоднородность проявляется на масштабах, сопоставимых с размером молекул, для гетерогенных систем – на масштабах, близких к размерам супрамолекулярных структур (кластеров), частиц или других образований, подходящих под определение фазы. При этом строгий подход к определению (измерению) и использованию размера наименьшей представительной пробы в аналитической химии отсутствовал, хотя было известно, что уменьшение количества материала в аналитической пробе приводит к возрастанию погрешности измерений [6].

Гетерогенная система, в которой рассматриваются явления связности или процессы переноса по перколяционным кластерам, характеризуется размерным фактором, носящим название радиус-корреляции [5]. По И. М. Соколову [5], это характерный размер кластера, пространственный масштаб неоднородной системы. Это такой характерный размер неоднородной системы, который разделяет пространственный масштаб ее рассмотрения на область однородного поведения, в которой свойства системы не зависят от размера выборки вещества, например, взятого для анализа, и область неоднородного или фрактального поведения, в которой свойства рассматриваемой системы (плотность, химический состав) зависят не только от размера, но и от местоположения (координат) рассмотрения (рис. 1).

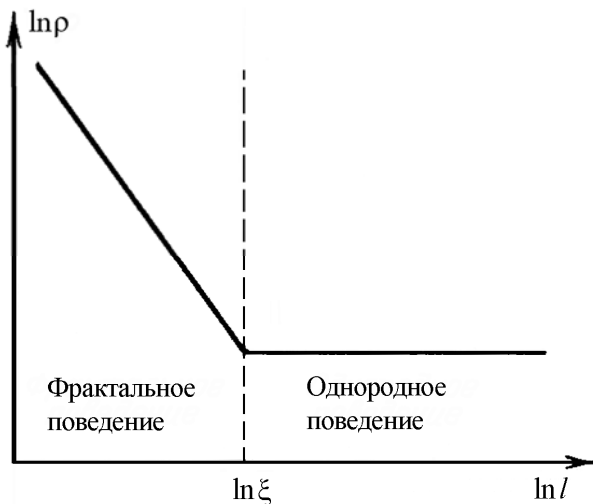


Рис. 1. Зависимость плотности гетерогенной системы от масштаба рассмотрения, ξ – длина корреляции [5]

вещества (материала), сохраняющее все метрологические характеристики, приписанные данному веществу (материалу). Наименьшая представительная проба может быть ограничена по массе, объему, длине, площади поверхности. Сопоставление определений и физического смысла терминов «радиус корреляции» и «размер наименьшей представительной пробы» позволяет утверждать, что, как минимум, в анализе однородности эти понятия оказываются тождественными. Возможно, вследствие того, что указанные понятия относятся к разным научным областям, на

Определение понятия «радиус корреляции» и его иллюстрация делают очевидной необходимость учета и сопоставления размера выборки вещества, отбираемого на исследование с величиной радиуса корреляции. Судить об однородности системы по выборке, размер которой меньше радиуса корреляции, бессмысленно, пусть даже современные аналитические методы и позволяют анализировать состав чрезвычайно малых количеств вещества с достаточно высокой точностью. Таким образом, к уже имеющимся двум масштабным факторам определения однородности гетерогенной системы добавляется еще один – радиус корреляции.

Важным размерным фактором в анализе однородности является размер наименьшей представительной пробы. В ГОСТ 8.315-97 «Стандартные образцы состава и свойств веществ и материалов. Основные положения», под ним понимается «наименьшее количество

факте их тождественности внимание не акцентировалось. При этом строгий подход к определению (измерению) и использованию размера наименьшей представительной пробы в аналитической химии отсутствовал, хотя было известно, что уменьшение количества материала в аналитической пробе приводит к возрастанию погрешности измерений [6].

Современные методы анализа, например такие как рентгеновский спектральный микроанализ (РСМ анализ) и лазерно-искровой эмиссионный спектральный анализ (ЛИЭС анализ), обладают высокой степенью локальности. Локальность метода – это линейный размер микрообъема, из которого с заданной вероятностью регистрируется аналитический сигнал [7]. Статистически достоверные характеристические рентгеновские спектры в РСМ анализе получаются с поверхности $\sim 1,0 \text{ мкм}^2$ при диаметре электронного зонда 100–300 нм [7]. Минимальный диаметр пучка лазера, возбуждающего атомно-эмиссионный спектр, $\sim 10 \text{ мкм}$. При этом количество вещества, достаточное для получения представительных спектров, составляет 10^{-15} и 10^{-8} г соответственно для РСМ [7] и ЛИЭС [8] анализа. Так мы подошли к последнему, но не менее важному масштабному фактору в анализе однородности дисперсных систем – размеру области возбуждения аналитического сигнала (спектра).

Приведем для наглядности и последующего анализа список основных масштабных факторов¹ в определении показателей однородности не только в порядке упоминания в тексте, но и по мере уменьшения масштаба:

- 1) V_m – объем (масса M_m) экземпляра дисперсного материала (смеси);
- 2) V_a – аналитический объем (масса аналитического объема M_a , линейный размер/радиус аналитического объема R_a);
- 3) R_{\min} – размер (линейный размер/радиус, масса M_{\min} или объем V_{\min}) минимальной представительной пробы;
- 4) ξ – длина/радиус корреляции (очевидно, что можно иметь в виду массу M_ξ и объем V_ξ корреляции);
- 5) $R_{a.s.}$ – размер/радиус (масса $M_{a.s.}$, объем $V_{a.s.}$) области возбуждения аналитического сигнала.

Часть масштабных факторов относится к свойствам и структуре анализируемого материала, а часть – к методическим особенностям, чувствительности и степени локальности аналитических методов. Только этот аспект является достаточным основанием для необходимости учета и сопоставления масштабных факторов при анализе однородности. Кроме того, факторы, имеющие физический смысл размера наименьшей представительной пробы или радиуса корреляции применительно к химическому составу порошковых дисперсных систем, сами по себе являются информативными показателями однородности. Чем меньше их значения при одинаковом химическом составе, тем более однородной является система. Возможная терминологическая неопределенность и отсутствие информации о положении границ и протяженности областей однородного и фрактального поведения свойств материалов могут привести к недостоверным или невозможным результатам их рассмотрения на малых масштабах. Любые измерения, предполагающие отбор и использование для анализа микрообъемов вещества, будут сопровождаться отсутствием сходимости результатов, если их характерный размер меньше радиуса корреляции, т. е. когда количество материала в выборке оказывается меньше размера минимальной представительной про-

¹ Здесь уместно напомнить, что размерные факторы могут выражаться через единицы длины, объема и массы, между которыми возможен пересчет через плотность и геометрические характеристики.

бы. При завышенных количествах материала в аналитическом объеме (пробе) информация, например, о качестве перемешивания, о которой судят по показателям однородности, не является правомерной в силу того, что соответствие рецептуре или высокие показатели однородности большой выборки смеси, взятой на анализ, ничего не говорят о распределении компонентов в ней. Так какой же объем соответствует размеру наименьшей представительной пробы и можно ли его измерить? Ответ на этот вопрос может быть получен при описании следующих примеров.

На рис. 2 и 3 представлены графики изменения значений коэффициентов вариации относительных интенсивностей линий атомно-эмиссионных спектров проб эквимолярной смеси порошков титана и алюминия [9] с разным временем перемешивания в зависимости от диаметра (D) лазерного пучка ЛИЭС анализатора. Энергия пучка оставалась постоянной, что приводило к изменению ее плотности, но количество вещества, испаряемого с поверхности и переводимого в плазму, оставалось приблизительно пропорциональным диаметру.

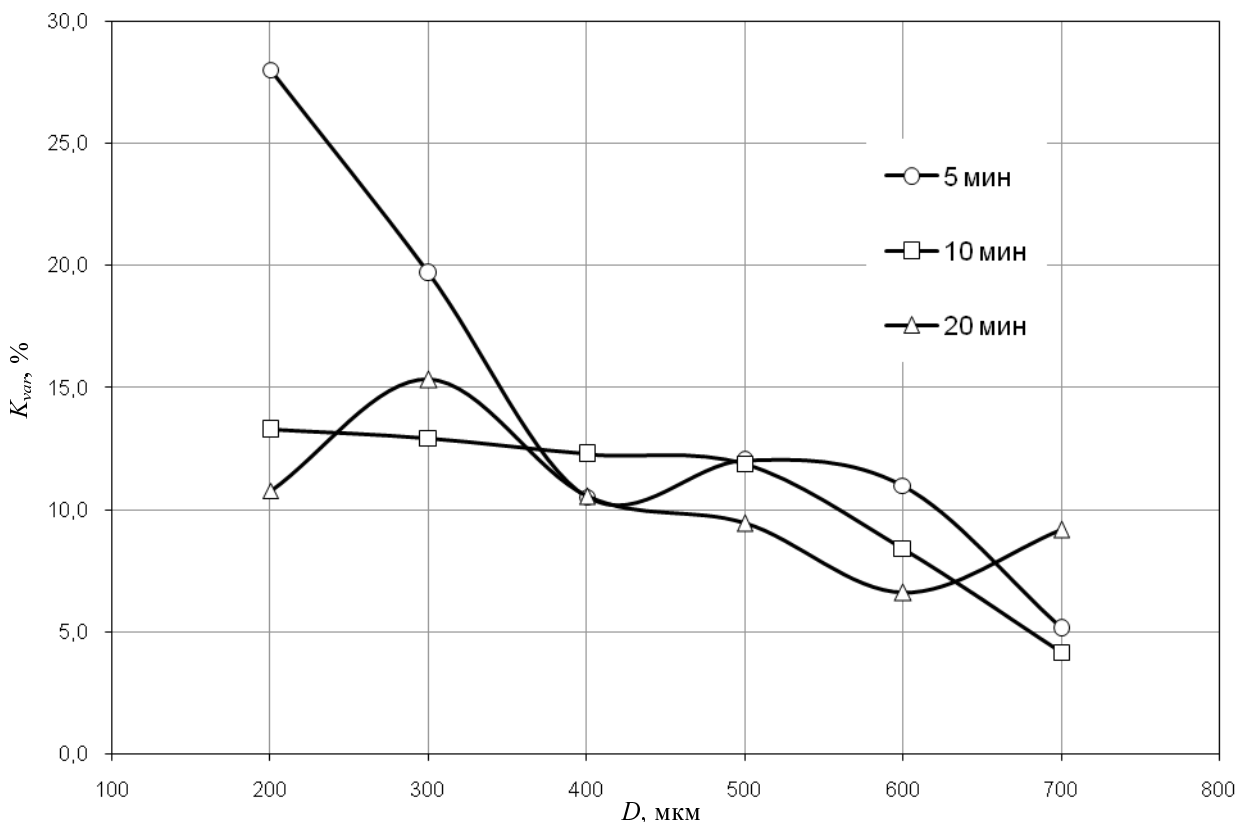


Рис. 2. Изменение показателя микронеоднородности порошковой смеси Ti+Al с увеличением диаметра лазерного пучка

На рис. 2 эти зависимости приведены для единичных аналитических проб и соответствуют понятию микронеоднородности, а на рис. 3 – усредненные данные для проб, отобранных из различных мест объема хранения экземпляров (опытных партий) смесей с разным временем перемешивания, которые относятся к понятию макронеоднородности.

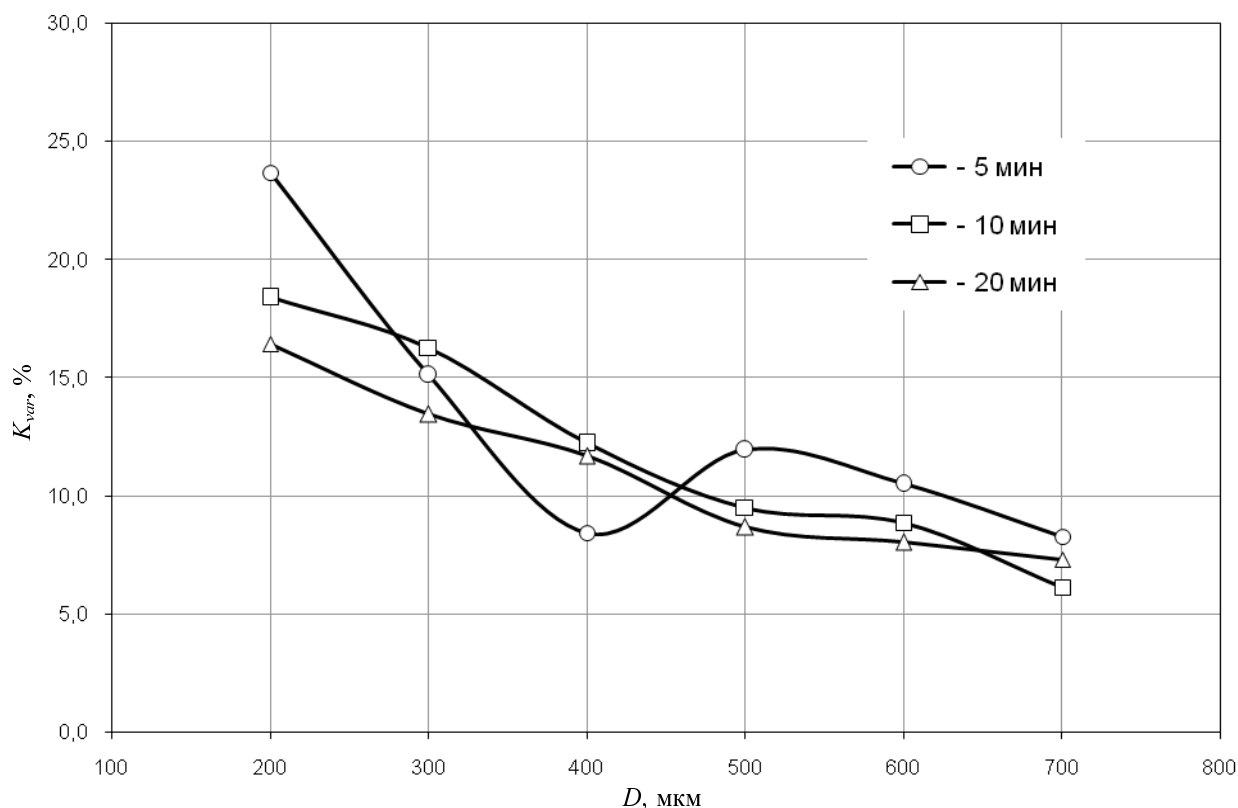


Рис. 3. Изменение показателя макронеоднородности порошковой смеси Ti+Al с увеличением диаметра лазерного пучка

При сравнении данных рис. 2 и 3 следует отметить, что значимое различие в показателях микронеоднородности и макронеоднородности, которое коррелирует с влиянием времени перемешивания, наблюдается только для $D < 300$ мкм. При всех других значениях диаметра пучка в диапазоне от 300 до 700 мкм показатели однородности для смесей с разным временем перемешивания практически не различаются и возможность различать их однородность данным методом практически утрачивается. Между тем в этом диапазоне изменения D вырождается зависимость аналитического сигнала и его разброса, вызванного неоднородностью материала, от размера области возбуждения в данном случае атомно-эмиссионного спектра. Это означает, что минимальной представительной пробой для данных смесей следует считать выборку вещества с размером D не менее 400 мкм, естественно при выбранных для анализа условиях подготовки аналитической пробы (прессованная таблетка со степенью уплотнения 0,84 отн. ед.). Нетрудно оценить массу вещества, соответствующую понятию наименьшей представительной пробы, при условии, что его объем, переводимый в плазму лазерным пучком, представляет собой полушарие: $m \approx 1/2 \cdot \pi / 6 \cdot 0,04^3 \cdot 3,85 \cdot 0,84 \approx 5 \cdot 10^{-5}$ г (здесь $3,85$ г/см³ – это значение кристаллической плотности эквимольной смеси Ti+Al). Любые методы анализа или исследования, для которых размер пробы или локальности соответствует массе данной смеси, менее 0,05 мг, вряд ли позволят получить достоверную информацию о ее свойствах.

Использование метода РСМ анализа с более высокой локальностью области возбуждения рентгеновского характеристического спектра позволяет внести некоторую ясность в анализ одно-

родности на различных масштабах. Например, можно объяснить «перехлест» кривых на рис. 2, полученных методом ЛИЭС анализа при $D \geq 300$ мкм. На рис. 4 и 5 представлены зависимости содержания Al и Ti на поверхности образца смеси, полученной перемешиванием в течение 5 мин. Эти данные получены для единичного аналитического объема, и статистические показатели, установленные в его пределах, должны считаться показателями микронеоднородности (см. ГОСТ 8.531-2002). Видно, что по этим графикам отмечается два масштабных перехода с разной степенью зависимости от размера области возбуждения спектра (HFW²), а не один, как можно было ожидать в соответствии с данными работы [5] (см. рис. 1). Границы при ~ 100 и ~ 500 мкм на рис. 4 и 5 отмечены пунктирными линиями. Между ними расположена область с относительно слабой зависимостью содержания химических элементов от размера области возбуждения спектра. По аналогии с [5], данную масштабную область следует считать областью микронеоднородного поведения аналитического сигнала, так как слева от нее расположена область неоднородного (фрактального) поведения, а справа, соответственно, – область однородного поведения.

Масштабные переходы от области однородного к области микронеоднородного и далее к области неоднородного поведения аналитического сигнала разделяются масштабными границами и характеризуются двумя значениями радиусов корреляции ξ_1 и ξ_2 . Как уже отмечалось, эти параметры также являются показателями однородности и их меньшие значения характеризуют более высокую химическую однородность. Кроме того, может представлять определенный интерес протяженность масштабной области микронеоднородного поведения аналитического сигнала $\Delta\xi_{1,2} = (\xi_1 - \xi_2)$, выраженная в микрометрах или относительных единицах, например, определяемых отношением $\xi_{1/2} = \xi_1/\xi_2$.

В табл. 1 приведены показатели однородности составов, установленные по поверхности единичных для каждого состава аналитических проб методом РСМ анализа. По данным таблицы видно, что по случайному фрагменту частиц, оказавшихся на поверхности аналитических проб, микронеоднородность составов нарастает в ряду 10 мин \rightarrow 5 мин \rightarrow 20 мин перемешивания.

Таблица 1

Показатели микронеоднородности, установленные для единичных аналитических объемов смесей Ti+Al с разным временем перемешивания по данным РСМ анализа

Смесь	Радиус корреляции				Коэффициент вариации				Содержание на поверхности* при HFW $\geq \xi_1$, % по массе		$\xi_{1/2}$, отн. ед.	
	ξ_1 , мкм		ξ_2 , мкм		K_{var1} , %		K_{var2} , %					
	Al	Ti	Al	Ti	Al	Ti	Al	Ti	Al	Ti	Al	Ti
Ti + Al, 5 мин	431,4	431,4	84,7	84,7	0,51	0,84	3,53	5,32	61,92	38,08	5,1	5,1
Ti + Al, 10 мин	352,6	360,6	84,7	89,2	1,03	1,11	3,12	3,04	51,82	48,18	4,2	4,0
Ti + Al, 20 мин	580,8	586,3	79,1	79,1	0,82	1,34	3,27	4,87	62,18	37,82	7,3	7,4

Примечание: * Содержание элементов определяется только по поверхности и подповерхностным слоям и не должно совпадать с рецептурой смеси из-за перекрытия (наложения) компонентов.

² HFW – Horizontal Field Width – ширина горизонтального поля (зрения) электронного микроскопа с интегрированной функцией РСМ анализа.

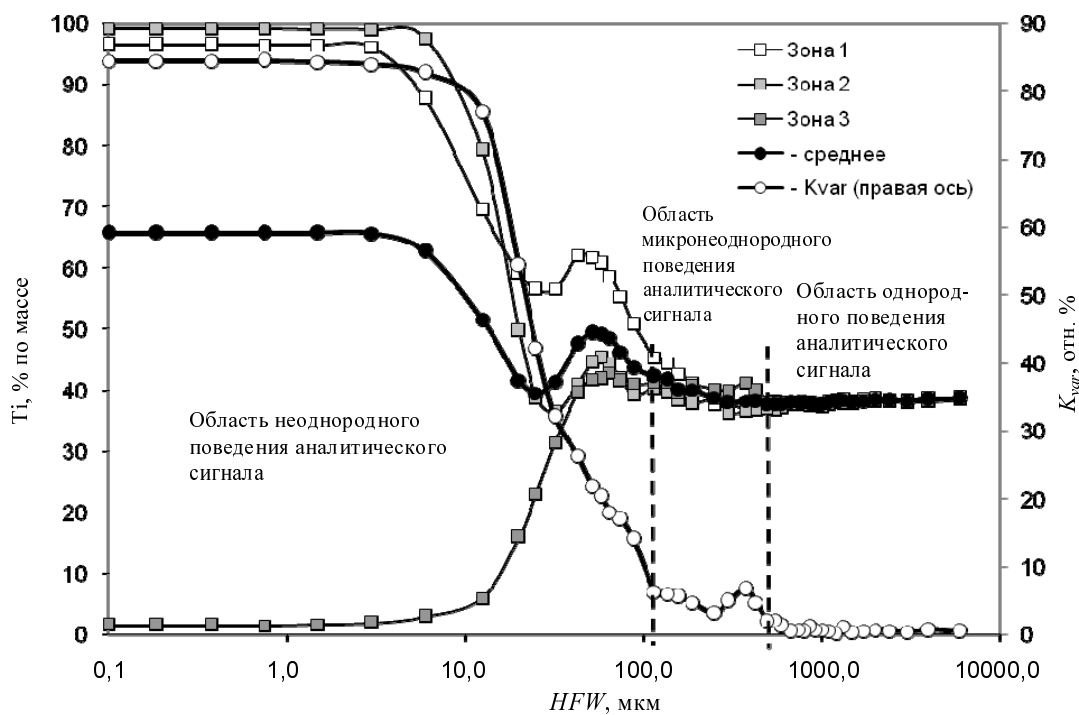


Рис. 4. Зависимость содержания титана на поверхности пробы смеси Ti+Al после 5 мин перемешивания от размера области сканирования (HFW)

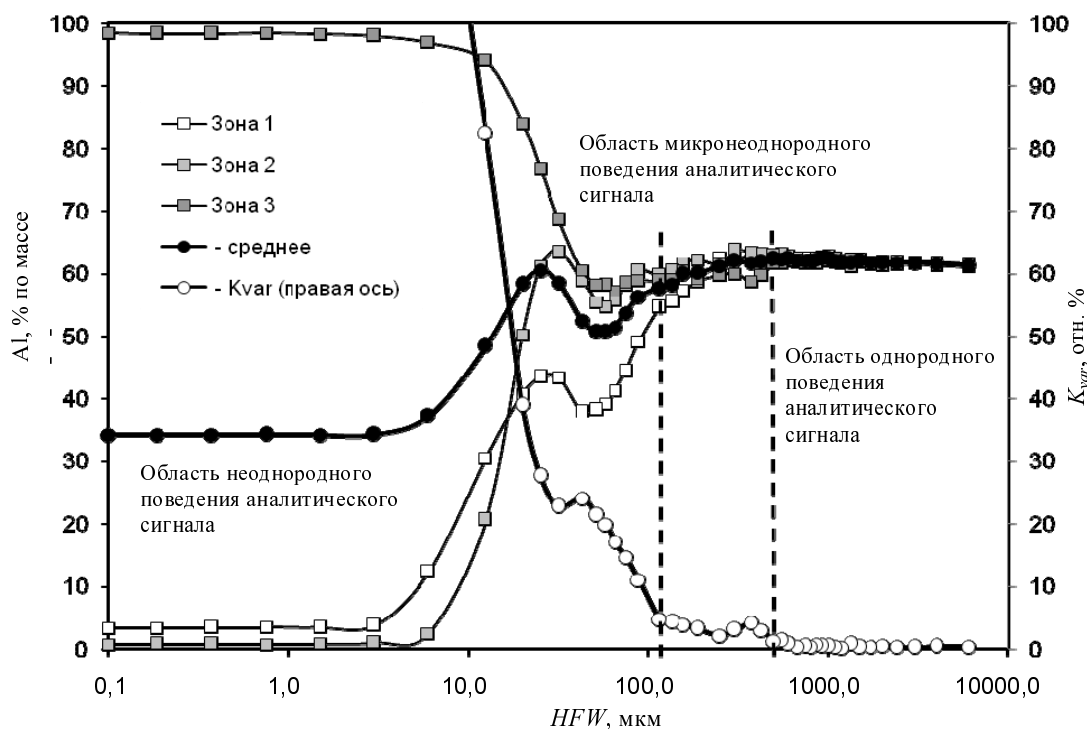


Рис. 5. Зависимость содержания алюминия на поверхности пробы смеси Ti+Al после 5 мин перемешивания от размера области сканирования (HFW)

Таким образом, для данных конкретных ансамблей частиц, оказавшихся на поверхности, распределение частиц наиболее однородно для десятиминутного перемешивания. Этот факт хорошо иллюстрируется электронно-микроскопическими (ЭМ) изображениями фрагментов поверхности частиц исследованных аналитических проб (рис. 6 и 7), а также объясняет инверсию значений K_{var} (перехлест кривых на рис. 2).

Наблюдаемое отличие в случайном наборе (ансамбле) частиц оказалось характерно для всей поверхности проб смесей на площади предметного столика $1,13 \text{ см}^2$. Так, например, поверхность пробы смеси с десятиминутным перемешиванием обогащена мелкой фракцией титана (см. также табл. 1) и содержит меньше алюминия по сравнению со смесями при 5- и 20-минутном перемешивании, что привело к заметно меньшему наклепу (см. рис. 5 и 6) при изготовлении аналитических проб методом прессования. Очевидно, что случайное образование различных сочетаний тех или иных частиц на поверхности единичных аналитических проб смеси может приводить к преувеличению стохастичности над ожидаемым повышением упорядоченности, вызванным увеличением длительности перемешивания. Локальные флуктуации в распределении частиц вызывают невоспроизводимый (случайный) ход кривых показателей микронеоднородности в зависимости от диаметра лазерного пучка для единичных проб смесей с различным временем перемешивания (см. рис. 2). При этом, как видно из рис. 3, случайный характер изменения показателей макронеоднородности, установленных по данным ЛИЭС анализа для всех проб смесей в пределах их экземпляров, также сохраняется. Ожидаемое повышение макрооднородности смесей, которая должна закономерно возрастать с увеличением времени перемешивания в ряду 5 мин \rightarrow 10 мин \rightarrow 20 мин, наблюдается только для $D = 200 \text{ мкм}$.

Оценим некоторые свойства смесей, которые характеризуют их качество по функциональному назначению, как композиций для СВС, и проследим взаимосвязь между качеством перемешивания и качеством продукта синтеза. СВС-композиция Ti+Al в эквимолярном соотношении компонентов должна приводить к образованию интерметаллического соединения – моноалюминид титана TiAl. Вполне резонно ожидать, что более высокое качество перемешивания должно приводить и к более качественному продукту синтеза. На рис. 8 представлены рентгеновские дифрактограммы продуктов синтеза для смесей с 5- и 10–20³-минутным перемешиванием. Видно, что при проведении синтеза из более макрооднородной шихты (с 10 и 20 мин перемешивания) образуется только один продукт – моноалюминид титана, тогда как в смеси с недостаточно длительным перемешиванием образовывались также алюминиды иной стехиометрии.

Еще одним примером проявления макронеоднородности смеси является различие в калорийности пиротехнических составов, аналогичных [10], на основе перхлората калия и титана с большой «перегрузкой» по горючему веществу. Значимым оказалось различие в содержании окислителя в образцах, отобранных из разных мест объема хранения одного и того же экземпляра смеси. На рис. 9 приведены зависимости содержания хлора, характеризующего содержание перхлората калия, от размера области сканирования в РСМ анализе. Видно, что указанные зависимости несколько различаются для образцов из разных мест хранения. Значения среднеквадратичного

³ Дифрактограммы продуктов синтеза из шихты, полученной после 10 и 20 мин перемешивания, практически не отличаются.

отклонения значительно выше для образца 2. Из этого следует, что образец 2 менее однороден, чем образец 1, что также подтверждается сопоставлением усредненных кривых содержания хлора в зависимости от HFW (рис. 10). При этом оказалось, что образец состава с меньшей удельной калорийностью содержит меньше окислителя по сравнению с образцом, отобранном из другого места объема хранения партии смеси и обладающим большим удельным тепловыделением. Меньшее содержание окислителя привело к снижению полноты сгорания горючего и, соответственно, к меньшему тепловыделению.

Следует отметить, что в качестве примеров были приведены сведения о влиянии макронеоднородности на брутто свойства смесей, хотя в нашей практике уже встречались случаи, когда показатели микронеоднородности сказывались на динамических характеристиках, связанных с межчастичными взаимодействиями, проявляющимися на микронных и субмикронных масштабах. В частности, к таким характеристикам относится скорость распространения фронта горения и, следовательно, время горения СВС композиций. Например, для СВС композиций на основе порошков циркония и оксидов металлов IV–VI групп отмечаются более длительное время горения и значительно больший разброс его значений для образцов тех смесей, у которых наблюдаются более высокие значения ξ_1 и, соответственно, более протяженные области микронеоднородного поведения. При этом прочие показатели микро- и макронеоднородности были близки между собой.

Описанные выше представления о необходимости учета и сопоставления масштабных факторов при использовании методов, обладающих высокой локальностью, для анализа однородности порошковых дисперсных систем легли в основу группы изобретений по патенту «Способ определения показателей однородности дисперсного материала спектральным методом и способ определения масштабных границ однородности дисперсного материала спектральным методом», приоритет № 2017102287 от 24.01.2017 г., важным отличительным признаком которого является подход к точному (с точностью до шага изменения HFW) определению положения масштабных границ однородности. Данный подход реализуется на основе определения понятий об однородном и неоднородном (фрактальном) поведении свойств гетерогенных систем, а именно, об отсутствии или наличии их зависимости от масштаба рассмотрения, а также об ее интенсивности. Правомерность такого подхода иллюстрируется графиком изменения производной функции зависимости содержания химического элемента, относящегося к какому-либо компоненту смеси, от размера области возбуждения спектра (рис. 11).

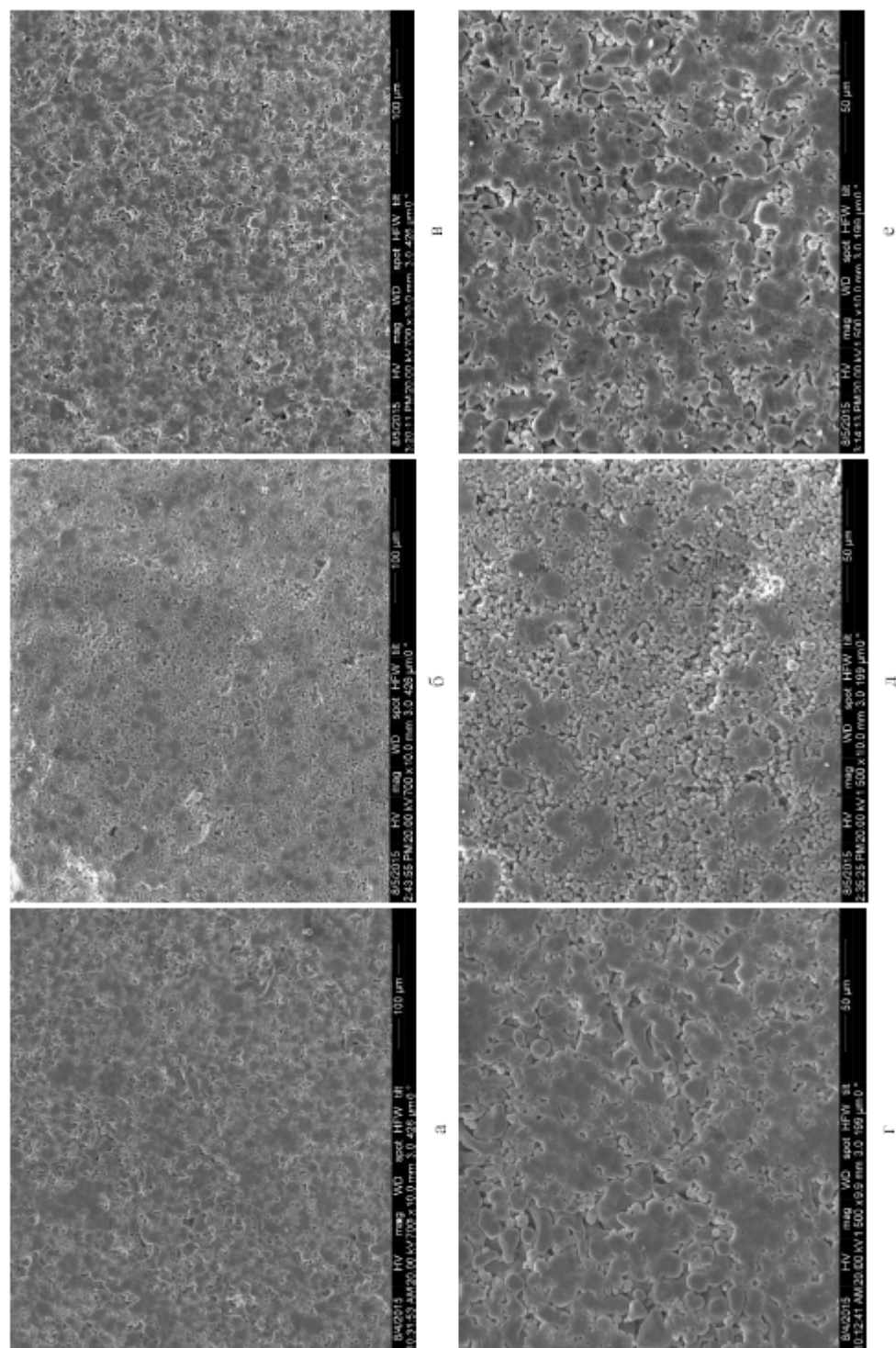


Рис. 6. Электронно-микроскопические изображения фрагментов поверхности аналитических проб сплавов Ti+Al с разным временем перемешивания: 5 мин (а, г); 10 мин (б, д); 20 мин (в, е) при увеличении 700× сверху и 1500× внизу

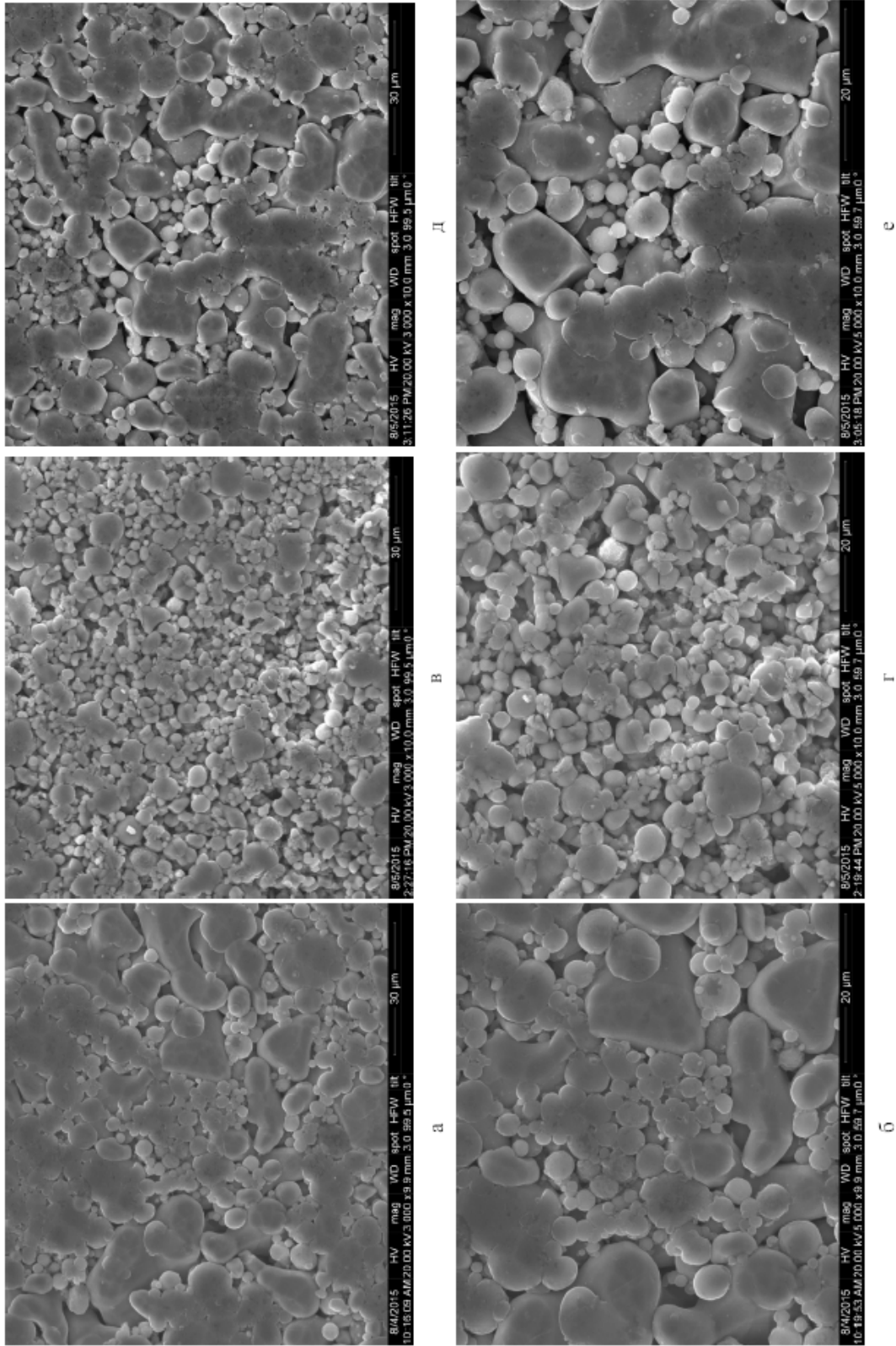


Рис. 7. Электронно-микроскопические изображения фрагментов поверхности аналитических проб смесей Ti+Al с разным временем перемешивания: 5 мин (а, б); 10 мин (в, г); 20 мин (д, е) при увеличении 3000× сверху и 5000× внизу

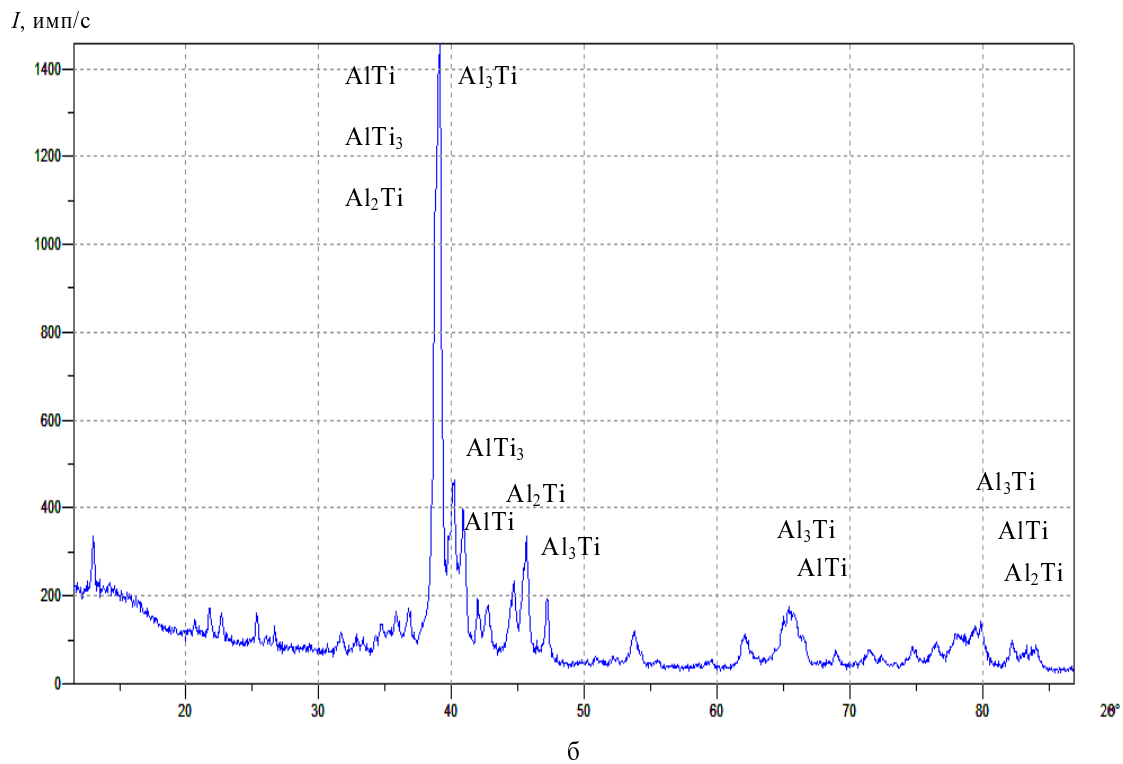
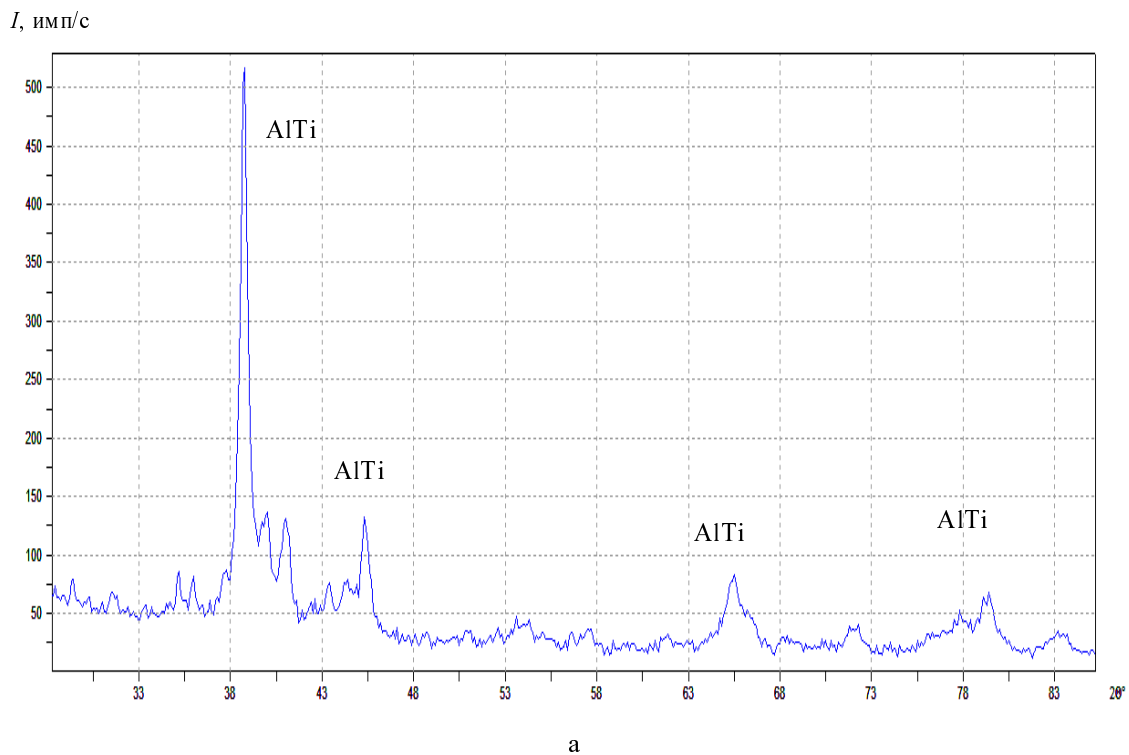


Рис. 8. Рентгеновские дифрактограммы продуктов СВС синтеза из смесей с 20 (а) и 5 (б) минутами перемешивания

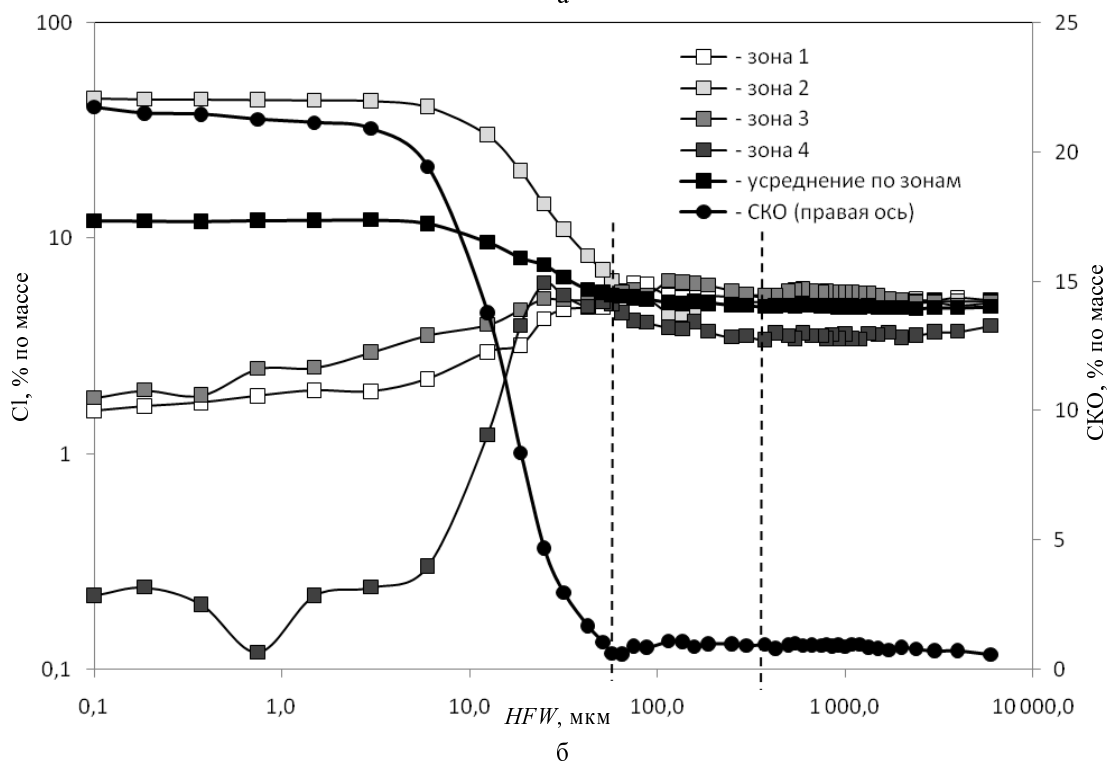
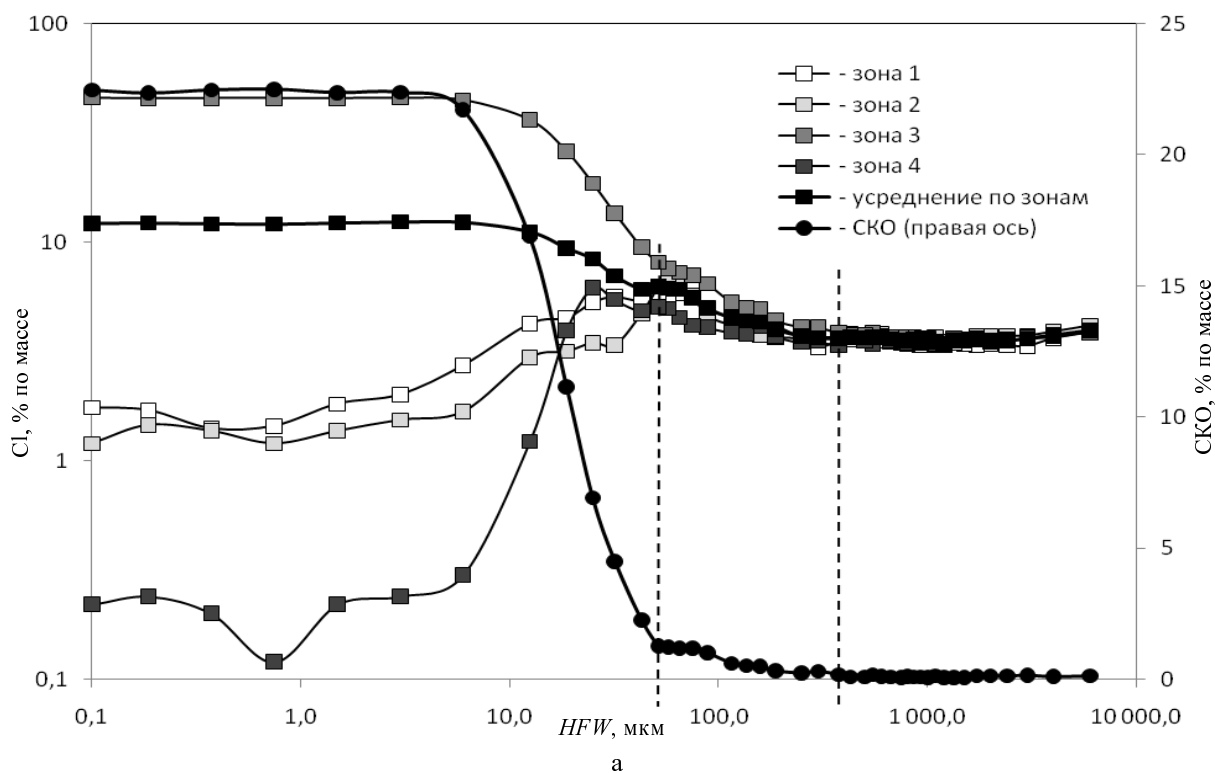


Рис. 9. Содержание хлора в различных координатных зонах образцов 1 (а) и 2 (б), отобранных из разных мест объема хранения одного экземпляра смеси в зависимости от размера области сканирования

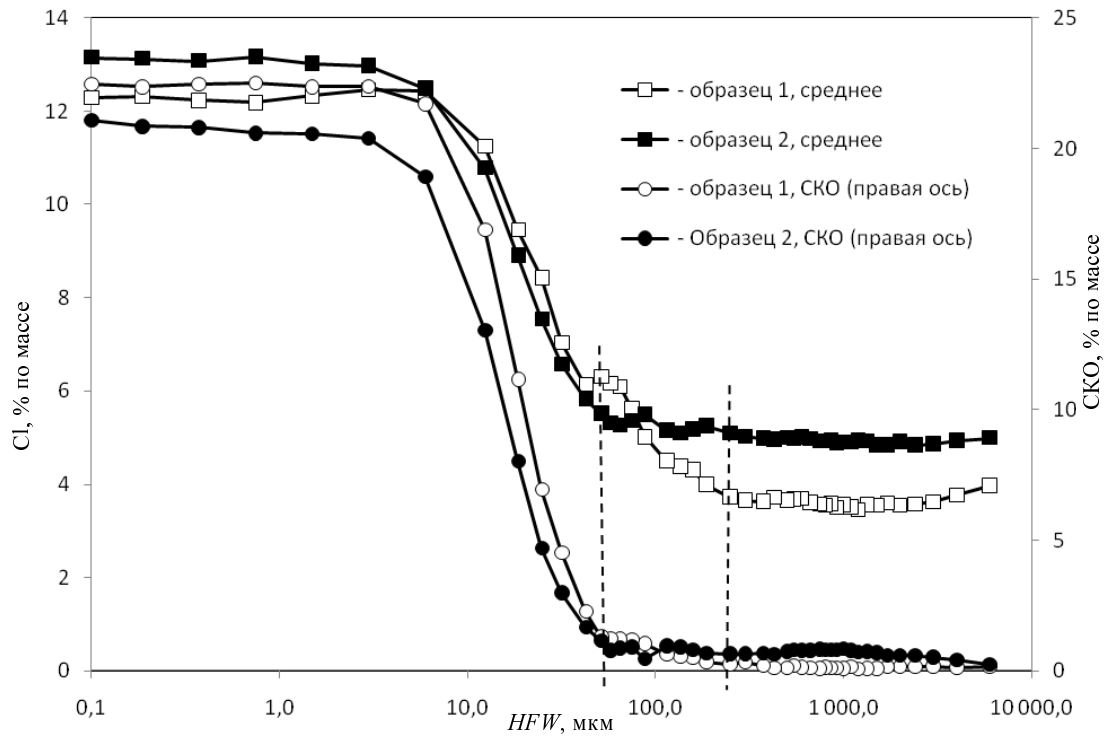


Рис. 10. Усредненные значения содержания хлора на поверхности образцов 1 и 2 в зависимости от размера области сканирования

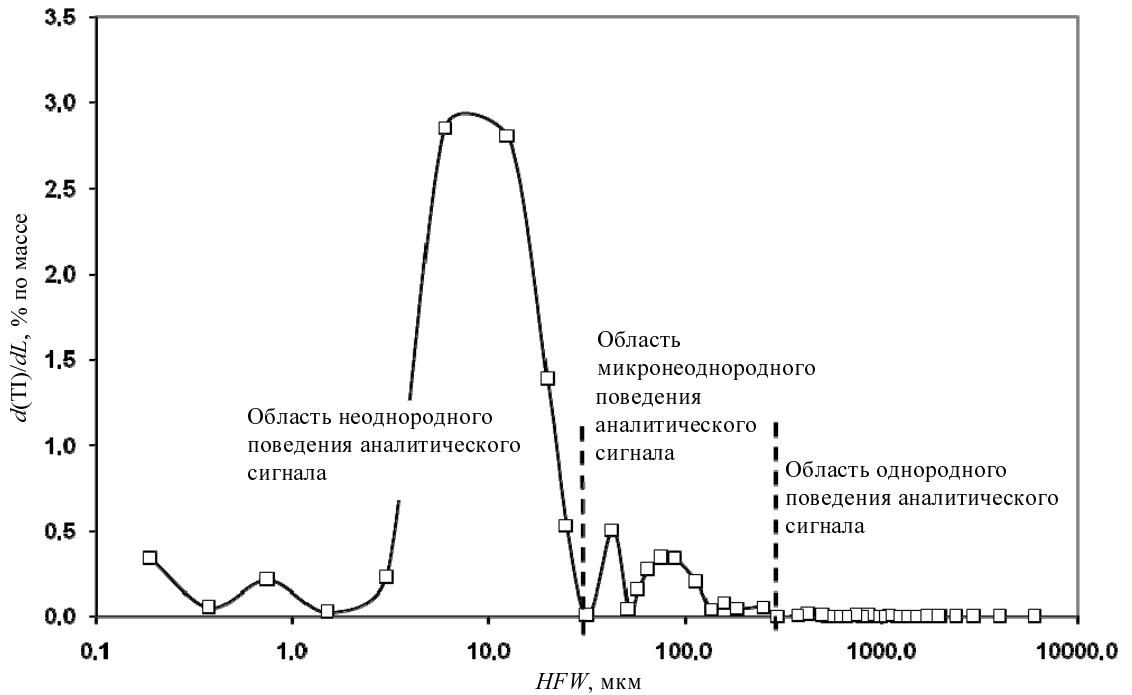


Рис. 11. Изменение производной функции зависимости содержания титана в смеси Ti+Al в зависимости от размера области сканирования

Реализация указанного способа с помощью изменения шага по размеру области возбуждения спектра и анализ поведения интенсивности аналитического сигнала позволяют определить положение масштабных границ, соответствующих понятиям радиуса корреляции или размера минимальной представительной пробы. Значения этих параметров определяются как для единичных аналитических проб (объемов), так и для образцов, отобранных из разных мест объема хранения экземпляра материала, и могут быть включены в перечень показателей микро- и макронеоднородности порошковых дисперсных систем и смесей на их основе.

Выводы

В анализе однородности порошковых дисперсных систем необходимы учет и сопоставление масштабных факторов, к которым относятся:

- V_m – объем (масса M_m) экземпляра дисперсного материала (смеси);
- V_a – аналитический объем (масса аналитического объема M_a , линейный размер/радиус аналитического объема R_a);
- R_{\min} – размер (линейный размер/радиус, масса M_{\min} или объем V_{\min}) минимальной представительной пробы;
- ξ – длина/радиус корреляции (очевидно, что можно иметь в виду массу M_ξ и объем V_ξ корреляции);
- $R_{a.s.}$ – размер/радиус (масса $M_{a.s.}$, объем $V_{a.s.}$) области возбуждения аналитического сигнала.

Использование спектральных методов анализа с высоким уровнем локальности возбуждения аналитического сигнала предполагает необходимость приведения в соответствие размеров области возбуждения аналитического сигнала, с одной стороны, и размеров минимальной представительной пробы или радиуса корреляции, с другой, так как первые относятся к чувствительности и степени локальности аналитического метода, а вторые – к метрологическим характеристикам, физико-химическим свойствам и структуре анализируемого материала.

Терминологическая неопределенность и отсутствие информации о границах и протяженности областей однородного, микронеоднородного и фрактального поведения аналитического сигнала, а также недостаточная или избыточная степень локальности метода анализа могут привести к недостоверным или невоспроизводимым результатам определения статистических показателей однородности.

Масштабные факторы, имеющие физический смысл радиуса корреляции или размера минимальной представительной пробы, сами по себе являются показателями однородности и подлежат измерению в анализе однородности порошковых дисперсных систем. Чем меньше их значения при одинаковом химическом составе сравниваемых материалов, тем более однородными являются дисперсные системы и выше качество перемешивания смесей на их основе.

Качество перемешивания и качество смесей не являются синонимами. Качество перемешивания однозначно определяется статистической равномерностью распределения компонентов (химической однородностью), а качество смесей – их свойствами в соответствии с функциональным назначением.

Список литературы

1. Плинер Ю. Л., Цеханский М. И., Болотов В. И. Оценка однородности смеси порошкообразных материалов // Труды ВНИИСО. Вып. VI. М.: Metallurgy, 1970. С. 45–50.
2. Шиц Л. А., Щукин Е. Д. Дисперсные системы // Химическая энциклопедия. Т. 2. М.: Советская энциклопедия, 1990. С. 80–82.
3. Новиков А. М., Коробков А. М. Качество смешения пиротехнических составов // Краткий энциклопедический словарь «Энергетические конденсированные системы». М: Янус-К, 2000. С. 516.
4. Епишин К. Л., Питюлин А. Н. Влияние процессов смешения на закономерности горения шихтовых составов // Физика горения и взрыва. 1986. Т. 22, № 1. С. 29–33.
5. Соколов И. М. Размерности и другие геометрические критические показатели в теории протекания // Успехи физических наук. 1986. Т. 150, вып. 2. С. 233–237.
6. Основы аналитической химии / Под ред. Ю. А. Золотова. В 2-х книгах. Книга 1. Общие вопросы. Методы разделения. М.: Высшая школа, 2004. С. 40.
7. Аналитическая химия и физико-химические методы анализа: Учебник / Под ред. А. А. Ищенко. В двух томах. Т. 2. М.: Издательский центр «Академия», 2010. С. 269.
8. Аналитическая лазерная спектроскопия / Под ред. Н. Оменетто. Пер. с англ. М.: Мир, 1982. С. 131.
9. Postnikov A., Mokrushin V., Potekhin A. et al. Evaluation of SHS Powder Composition Uniformity using Spectral Analysis Methods // Int. Symp. on Self-Propagating High Temperature Synthesis. Abs. 2015. N. 1107. P. 147, 148.
10. Aerospace Ordnance Handbook / Ed. by F. V. Polland, J. H. Arnold Jr. Вспомогательные системы ракетно-космической техники / Под ред. И. В. Тишунина. М.: Мир, 1970.

Scale Effects in the Uniformity Analysis of Powder Disperse Systems and their Mixes

V. V. Mokrushin, I. A. Tzareva, O. Yu. Zabrodina, A. A. Potekhin,
P. G. Berezhko, A. Yu. Postnikov, D. V. Chulkov

One of the most important tasks in manufacturing and use of powder materials and their mixes is monitoring of their uniformity that allows judging about e.g. the quality of mixing or optimal choice of its modes. In doing so, scale factors pertaining both to the analytical method (the analytical volume size, size of the analytical signal excitation area) and an object of the analysis (the size of a minimal representative sample) are of key importance. Inaccuracy in the ratio between the aforementioned parameters leads to untrustworthy results of the uniformity evaluation. Besides, the powder disperse systems and their mixes refer to inherently non-uniform, fractal systems, whose all properties depend on the consideration scale. The scale factor characterizing the system property transition from the uniform behavior to non-uniform behavior is the radius (length) of the correlation. In the chemical composition uniformity analysis this is the minimal size of the analytical signal excitation area, above which the chemical composition doesn't depend on the matter quantity, while below which it is manifested the chemical composition dependence not only on the size but also on coordinates of the matter excitation area. Determination of the notions and measurement of the uniformity scale factor values not only withdraw the inaccuracy in the influence of the matter quantity on the analysis outcome, but allow finding subtle differences in micro nonuniformity of the powder disperse systems that define their properties and behavior.

Влияние теплопроводности конструкционных материалов на эффективность пластинчатых радиаторов многоканальных модулей лазеров с ядерной накачкой

А. Н. Сизов

Представлены результаты расчетных исследований эффективности пластинчатых радиаторов, предназначенных для промежуточного охлаждения газа в многоканальных модулях лазеров с ядерной накачкой (ЛЯН). Показано, что зависимость эффективности радиаторов от коэффициента теплопроводности его теплоотбирающих пластин имеет ярко выраженный максимум, что открывает возможности для оптимизации выбора материалов при проектировании стационарных многоканальных модулей ЛЯН.

Для ЛЯН, работающих в стационарном режиме, была предложена концепция системы с поперечной прокачкой газа [1, 2]. Система представляет собой набор лазерных каналов прямоугольного сечения с плоскими урановыми слоями шириной порядка 100 мм, нанесенными на внутреннюю поверхность боковых стенок каналов, параллельных направлению газового потока. Для охлаждения разогреваемой в канале смеси на его выходе размещается радиатор в виде набора тонких пластин, располагаемых параллельно потоку газа (и перпендикулярно урановым слоям). На входе в канал ставится такой же радиатор, который позволяет за счет теплообмена газа с пластинами задать вдоль всей длины лазера требуемую входную температуру рабочей смеси и выровнять ее скорость. Охлаждаемый жидким теплоносителем пластинчатый радиатор, прилегающий непосредственно к лазерному каналу, имеет вид, представленный на рис. 1.

Весьма важным является вопрос о влиянии материала пластинок радиатора на эффективность его действия. И хотя в рассматриваемом радиаторе явно выделяются два взаимно перпендикулярных направления теплопередачи (снижение теплосодержания газа в направлении его

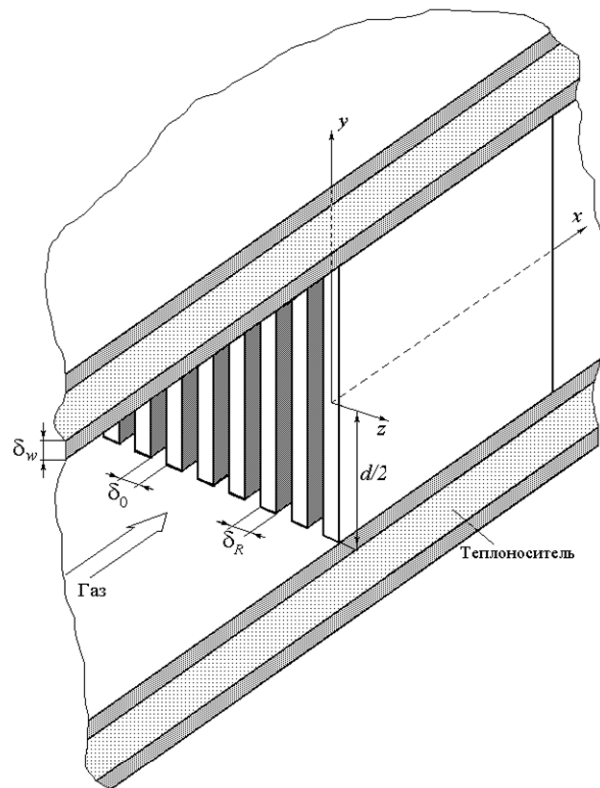


Рис. 1. Пластинчатый радиатор

движения и перенос тепла по пластинкам к охлаждаемой подложке), на первый взгляд кажется очевидным, что чем выше коэффициент теплопроводности пластинок, тем эффективнее передача отбираемого пластинками от газа тепла внешнему теплоносителю. В действительности дело обстоит сложнее. Так, например, в радиаторе с пластинками, обладающими большей теплопроводностью, реализуются более интенсивные отбор тепла у газа и выравнивание температуры в поперечном направлении вдоль оси y . Но этот процесс приводит к уменьшению градиентов температуры в направлении оси y . Не исключена ситуация, когда поток тепла, определяемый произведением коэффициента теплопроводности на градиент температуры, на границе контакта пластинки с ее подложкой может оказаться меньше, чем при более малой теплопроводности пластинок, т. е. может возникнуть конкуренция двух указанных процессов. В этом случае возникает задача на оптимизацию коэффициента теплопроводности, что фактически является задачей по оптимальному подбору материала пластинок.

В работе [3] в приближении независимости коэффициентов теплопроводности пластин радиатора и сопряженных с ними стенок было получено решение задачи о пространственном распределении температуры газа в таком радиаторе и его пластинах

$$\tau(x, y) = T_l + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_n}{s_{2n} - s_{1n}} \{s_{2n} \exp(s_{1n}x) - s_{1n} \exp(s_{2n}x)\} \cos\left(\frac{2\beta_n}{d}y\right), \quad (1)$$

$$T(x, y) = \tau(x, y) + \frac{1}{\alpha_0} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_n s_{1n} s_{2n}}{s_{2n} - s_{1n}} \{\exp(s_{1n}x) - \exp(s_{2n}x)\} \cos\left(\frac{2\beta_n}{d}y\right), \quad (2)$$

где β_n – спектр собственных значений задачи. Он определяется трансцендентным уравнением

$$\operatorname{tg} \beta_n = \frac{hd}{2\beta_n}; \quad n = 1, 2, 3, \dots, \quad (3)$$

а параметры s_{1n} и s_{2n} являются отрицательными корнями характеристического уравнения (третий корень положителен и неограниченно растет с ростом n);

$$s^3 + \alpha_0 s^2 - (\lambda_n + H)s - \alpha_0 \lambda_n = 0, \quad (4)$$

где $\lambda_n = \frac{4\beta_n^2}{d^2}$.

Входящие в эти соотношения параметры H , α_0 и h определяются следующим образом:

$$H = \frac{\alpha}{k_R \delta_R}; \quad \alpha_0 = \frac{\alpha}{c_P \rho_0 V_0 \delta_0}; \quad h = \frac{\delta_0 + \delta_R}{\delta_R k_R \left[\frac{1}{\alpha_l} + \frac{\delta_w}{k_w} \right]} \varphi. \quad (5)$$

В формулах (1)–(5) c_P – удельная теплоемкость газа при постоянном давлении; d – высота пластин радиатора, равная расстоянию между урановыми слоями канала; k_R – коэффициент теплопроводности пластин радиатора; k_w – коэффициент теплопроводности подложки радиатора; T – температура пластин радиатора, усредненная по их ширине; T_l – температура жидкого теплоносителя; V_0 – скорость газа между пластинами в радиаторе; α – коэффициент теплоотдачи в плоской щели; α_l – коэффициент теплоотдачи к жидкости; δ_0 – расстояние между пластинами радиатора (ширина газового зазора); δ_R – толщина пластины радиатора; δ_w – толщина подложки радиатора; τ – температура газа, усредненная по ширине газового зазора; ρ_0 – плотность газа на входе в радиатор; φ – поправочный коэффициент, который учитывает влияние дополнительного термического сопротивления, возникающего из-за неидеальности теплового контакта пластин радиатора с подложкой, вследствие их шероховатости.

Коэффициенты C_n имеют вид

$$C_n = \frac{\int_0^{d/2} f(y) \cos\left(\frac{2\beta_n}{d}y\right) dy - \frac{dT_l}{2\beta_n} \sin \beta_n}{\|\Phi_n\|^2}, \quad (6)$$

где f – поперечное распределение температуры газа на входе в радиатор.

Квадрат нормы

$$\|\Phi_n\|^2 = \frac{d}{4} + \frac{d}{8\beta_n} \sin 2\beta_n.$$

Данные решения получены в приближении $T_l(x) = const$, т. е. при условии, что приращение температуры охлаждающего теплоносителя в пределах протяженности радиатора должно быть пренебрежимо мало, в частности, по сравнению с перепадом температуры газа между входом и выходом радиатора. Последнее требование означает, что должно выполняться условие

$$\frac{c_p \rho_0 V_0 d}{c_{pl} \rho_l U \delta_l} \frac{\delta_0}{\delta_0 + \delta_R} \ll 1, \quad (7)$$

где d – высота пластин радиатора; c_{pl} – теплоемкость жидкого теплоносителя при постоянном объеме; U – скорость жидкого теплоносителя; δ_l – высота канала жидкого теплоносителя; ρ_l – плотность жидкого теплоносителя.

Проведенные на трех типах радиаторов эксперименты [4] показали, что относительное отличие эффективности радиаторов, рассчитываемой с использованием приведенного выше решения, от эффективности, определяемой в эксперименте, не превосходит 15 %. Указанная эффективность определяется как

$$\chi = \frac{\tau(0) - \tau(L)}{\tau(0) - T_l}, \quad (8)$$

где L – длина радиатора в направлении потока газа; $\tau(0)$ – усредненная по поперечному сечению температура газа на входе в радиатор; $\tau(L)$ – усредненная по поперечному сечению температура газа на выходе из радиатора.

Как видно из равенств (1)–(6), материал пластинок радиатора влияет на конечный результат расчета только через коэффициент теплопроводности. Для исследования этого влияния была проведена серия расчетов, в которых коэффициент теплопроводности менялся в пределах от 30 до 500 Вт/м·К без привязки к конкретному материалу. Общими для всех вариантов в проведенных расчетах были следующие параметры: скорость водного теплоносителя – $U = 0,57$ м/с; высота его канала – $\delta_l = 3,5$ мм; его температура – $T_L = 15$ °С. Скорость газа непосредственно перед входом в радиатор варьировалась от 2,5 до 10 м/с; ширина зазора δ_0 между пластинами радиатора – от 0,015 до 0,06 см; толщина пластин δ_R – от 0,015 до 0,06 см; длина пластин L – от 1 до 4 см.

Расчеты были проведены для гелия (давление $P = 2,5 \cdot 10^5$ Па) и аргона ($P = 0,5 \cdot 10^5$ Па) при однородном по сечению распределении температуры на входе в радиатор $\tau(0) = 50$ °С. Выбранные значения давлений являются оптимальными для канала с поперечным размером $d = 2$ см [5]. Во всех исследованных вариантах явно прослеживается наличие оптимума в зависимости эффективности радиатора от коэффициента теплопроводности пластин. На рис. 2 и 3 приведены результаты расчетов зависимости эффективности охлаждения гелия и аргона в радиаторе с параметрами $\delta_0 = 0,3$ мм; $\delta_R = 0,3$ мм; $L = 30$ мм от коэффициента теплопроводности его пластин. Скорость газа перед входом в радиатор $V = V_0 \cdot \delta_0 / (\delta_0 + \delta_R) = 5,5$ м/с.

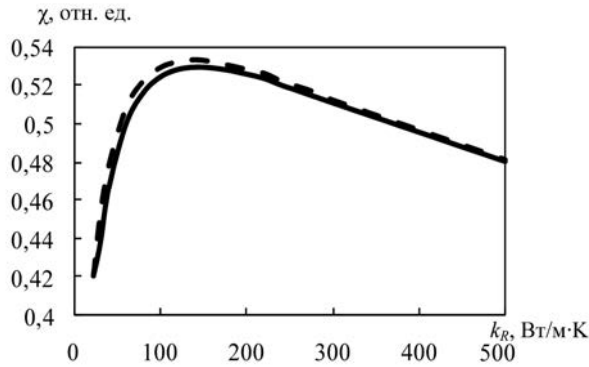


Рис. 2. Зависимость эффективности радиатора от коэффициента теплопроводности его пластин для He ($P = 2,5 \cdot 10^5$ Па): ——— — однородное распределение температуры на входе, - - - - - неоднородное распределение температуры на входе

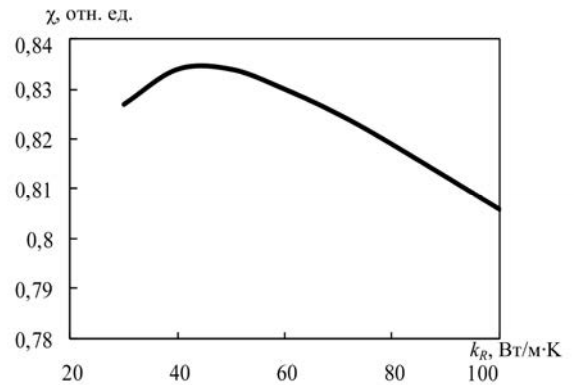


Рис. 3. Зависимость эффективности радиатора от коэффициента теплопроводности его пластин для Ar ($P = 0,5 \cdot 10^5$ Па)

Аналогичные зависимости для трех различных значений скорости газа при тех же параметрах $\delta_0 = 0,3$ мм; $\delta_R = 0,3$ мм; $L = 30$ мм приведены на рис. 4. Влияние протяженности пластинок отражает рис. 5.

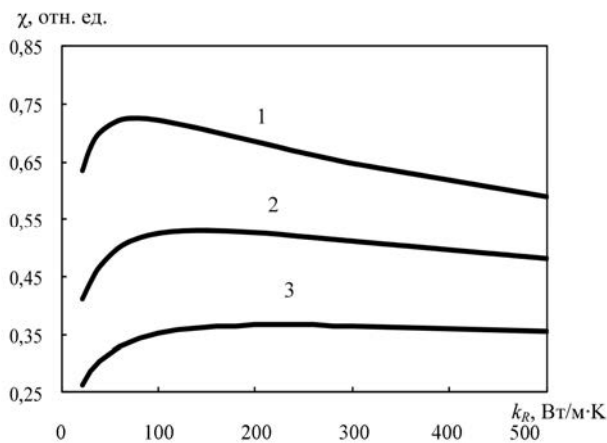


Рис. 4. Зависимость эффективности радиатора от коэффициента теплопроводности пластинок (для He при $P = 2,5$ атм) при скоростях газа: 1 – $V = 2,5$ м/с; 2 – $V = 5,5$ м/с; 3 – $V = 10$ м/с

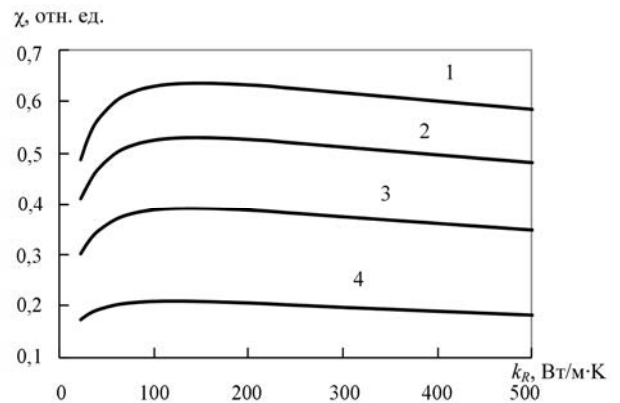


Рис. 5. Зависимость эффективности от коэффициента теплопроводности пластинок (для He при $P = 2,5$ атм; $V = 5,5$ м/с; $\delta_0 = 0,03$; $\delta_R = 0,03$ см) при 1 – $L = 4$ см; 2 – $L = 3$ см; 3 – $L = 2$ см; 4 – $L = 1$ см

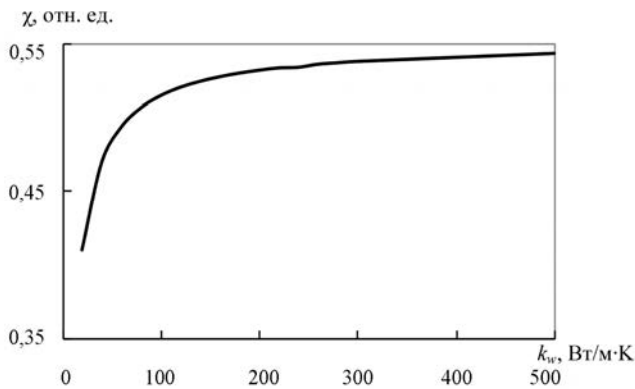


Рис. 6. Зависимость эффективности от коэффициента теплопроводности подложки радиатора (для He при $P = 2,5$ атм; $T_L = 15$ °С; $L = 3$ см) при $k_R = 2,4$ Вт/м·К

сти, толщины пластин, расстояния между ними, протяженности радиатора. Этот факт открывает широкие возможности как подбором материала пластин, так и вариациями перечисленными выше параметрами, для достижения наивысшей эффективности радиаторов при проектировании многоканальных модулей ЛЯН.

Зависимость эффективности радиатора от коэффициента теплопроводности его подложки – наоборот, монотонно нарастающая функция этого коэффициента. При малых значениях коэффициента она нарастает очень круто, но начиная примерно со значений, свойственных таким металлам, как алюминий, ее нарастание весьма невелико.

Для выяснения вопроса, насколько ощутимо сказывается на эффективности отличие реального профиля распределения температуры на входе в радиатор от однородного, была проведена отдельная серия расчетов с профилем температуры, полученным из двумерных расчетов течения газа в предшествующем радиатору лазерном канале. Расчеты проводились по методике, изложенной в работе [3]. Для гелия при $P = 2,5$ атм средняя температура $\tau(0) = 50$ °С и скорость $V = 5,5$ м/с на выходе из канала (входе в радиатор) согласно расчетам возникают при следующих параметрах канала: температура газа на входе в канал $\tau_{вх} = 20$ °С, скорость $U_0 = 5$ м/с, ширина лазерного канала $d = 20$ мм, его протяженность в направлении движения газового потока $b = 60$ мм, плотность урана в активном слое $\rho_U = 18,7$ г/см³, толщина этого слоя $\delta_U = 2,25 \cdot 10^{-3}$ мм, сам слой покрыт защитной пленкой алюминия толщиной 0,5 мкм, плотность делений ядер урана в активном слое $q = 7 \cdot 10^{15}$ дел/(см³с). На рис. 2 для сопоставления пунктиром приведена зависимость эффективности для неоднородного профиля температуры. Как и следовало ожидать, эффективность радиаторов рассмотренных протяженностей очень слабо зависит от профиля температуры на входе.

Соответствующие расчеты были проведены и для установления зависимости эффективности от коэффициента теплопроводности подложек, на которые опираются пластинки радиатора. Наблюдается простой монотонный рост без наличия экстремума (рис. 6).

В результате серии проведенных исследований было установлено:

- зависимость эффективности радиатора от коэффициента теплопроводности его пластин не является монотонно нарастающей функцией этого коэффициента. С ростом коэффициента теплопроводности эффективность вначале круто нарастает, достигая максимума, а затем спадает. Положение максимума зависит от сорта газа, его скорости

Список литературы

1. Боровков В. В., Лажинцев Б. В., Нор-Аревян В. А. и др. Особенности газодинамики прокачных лазеров, возбуждаемых осколками деления ядер урана // Квантовая электроника. 1995. Т. 22, № 12. С. 1187–1191.
2. Пат. № 3207271/25 (1984). Газовый лазер / В. В. Боровков, Б. В. Лажинцев, В. А. Нор-Аревян и др. // Изобретения. 1996. № 5.
3. Мельников С. П., Сизов А. Н., Синянский А. А. Лазеры с ядерной накачкой. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2008.
4. Гаранин А. В., Пунин В. Т., Сизов А. Н. Эффективность радиаторов многоканальных модулей лазеров с ядерной накачкой // Ядерная физика и инжиниринг. 2013. Т. 4, № 11–12. С. 983–988.
5. Сизов А. Н. О связи пространственных неоднородностей накачки с мощностью генерации лазеров, возбуждаемых осколками деления урана // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20, № 9. С. 64–67.

Effect of Thermal Conductivity of Structural Materials on the Efficiency of Plate Radiators of Multichannel Modules of Nuclear-Pumped Lasers

A. N. Sizov

Presents the results of studies of efficiency of plate radiators, intended for intermediate cooling of the gas in multichannel units of NPL. It is shown that dependency of radiator efficiency from thermal conductivity of their plates has brightly denominated maximum, that opens up the possibility of optimization of the choice material when designing the stationary multichannel units of NPL.

УДК 622.2

Реакция взрывчатого вещества на основе октогена и ТАТБ на динамическое нагружение методом составного стержня Гопкинсона

А. М. Васильев, А. В. Юрлов, В. А. Пушков,
Т. Г. Найданова, А. Н. Цибиков

Приведены результаты экспериментов по исследованию взрывчатых веществ (ВВ) на основе октогена и ТАТБ при нагружении методом составного стержня Гопкинсона. Получены данные о динамических диаграммах сжатия и локализованного сдвига в диапазоне скоростей деформаций $(0,2-3,7) \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$. Определены величины динамической прочности и пластичности при сжатии, рассмотрены некоторые вопросы инициирования взрывчатого превращения при динамическом деформировании.

Введение

Вопросы, связанные с изучением возможности инициирования взрывчатых превращений (ВП) во ВВ при низкоскоростном воздействии, имеют большое практическое значение, в частности при моделировании аварийных ситуаций. В деятельности ЯОК используются ВВ, например для исследовательских целей или в составе конструкций. При хранении, транспортировке и работе с ВВ могут возникать аварийные ситуации с воздействием на ВВ динамических нагрузок (падение самолета на склад ВВ, транспортная авария, теракт и т. п.). Для обеспечения технической безопасности необходимо знать свойства ВВ при воздействии различных нагрузок, включая динамические.

Из анализа имеющихся экспериментальных данных можно сделать вывод, что наиболее вероятным механизмом инициирования ВП является образование очагов реакции в результате диссипации энергии при пластической деформации в твердых ВВ. Очаги формируются сдвиговыми деформациями, приводящими к образованию трещин и относительному скольжению материала ВВ по границе трещины, при этом в процессе деформирования происходит локализация адиабатического сдвига. В полосе сдвига реализуется сильный разогрев ВВ и возникает очаг реакции ВП.

Исследованиями механического воздействия на ВВ при различных скоростях нагружения активно занимаются в различных лабораториях, в частности в российских и американских [1–6]. Однако на сегодня для создания более адекватных моделей инициирования ВП необходим больший объем экспериментальных данных [3, 7, 8]. В настоящей работе приведены результаты исследования методом составного стержня Гопкинсона (ССГ) динамического сжатия и локализованного адиабатического сдвига в образцах из ВВ на основе октогена и ТАТБ (триаминотринитробензол). Скорости деформаций в опытах составили $(0,2–3,7) \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$.

Методика исследований

Эксперименты на динамическое сжатие

Метод ССГ исследователи используют для изучения поведения ВВ и тестирования численных моделей деформирования [9]. На рис. 1 приведена схема проведения опытов на динамическое сжатие материалов методом ССГ.

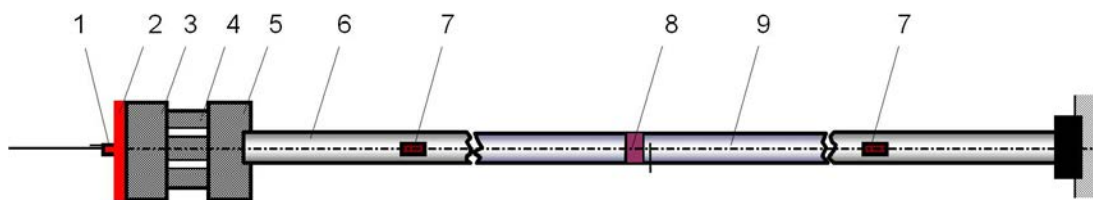


Рис. 1. Схема установки ССГ в редакции опытов на сжатие: 1 – электродетонатор, 2 – слой пластического ВВ, 3 – стальной ударник, 4 – перфокрешер (Al), 5 – стальной переходник, 6 – нагружающий стержень, 7 – тензодатчик, 8 – образец, 9 – опорный стержень

Образец (диаметр 20 мм, высота 10 мм), как в классическом варианте метода ССГ, размещается между нагружающим и опорным стержнями (см. рис. 1). Устройство для создания импульсов нагружения с примерно постоянной амплитудой состоит из стального ударника 3 с наклеенным на его свободном торце слоем пластического ВВ 2, перфокрешера из алюминиевого сплава 4 и переходного стального диска 5. Иницирование ПВВ осуществлялось с помощью электродетонатора 1. Нагружающий 6 и опорный 9 мерные стержни (диаметром 20×1000 мм) изготовлены из титана ВТ20. Обработкой сигналов (импульсов деформаций) от тензодатчиков 7 строилась диаграмма «напряжение–деформация» σ – ε при сжатии и определялась скорость деформации.

Эксперименты по исследованию локализованного сдвига

Схема исследований локализованного сдвига в ВВ приведена на рис. 2. Узел взрывного нагружения, стержни Гопкинсона, методика измерений деформаций были такие же, как в опытах по изучению динамического сжатия (см. рис. 1), отличался лишь узел крепления образца (см. рис. 2).

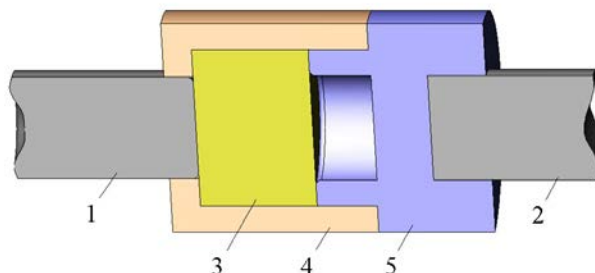


Рис. 2. Схема испытаний ВВ на локализованный сдвиг: 1 и 2 – нагружающий и опорный стержни, 3 – образец, 4 – корпус, 5 – опора

Здесь образец (диаметр 30 мм, высота 20 мм) помещается в специальную обойму, состоящую из корпуса и опоры. Средняя часть образца выдавливается внутрь опоры 5 при этом между выдавливаемой и остающейся частями должен формироваться локализованный сдвиг.

Результаты исследований

Эксперименты по изучению динамического сжатия взрывчатого вещества на основе октогена

Опыты проведены при скоростях деформации $\dot{\epsilon} = (0,3 - 2,0) \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$ (скорость нагружения $V_{\text{нагр.}} = 2,5 - 20 \text{ м/с}$), амплитуда нагружающих импульсов давлений составила $\sigma_i = 45 - 560 \text{ МПа}$ или усилий $(14,1 - 175,8) \cdot 10^3 \text{ Н}$. В экспериментах при $\dot{\epsilon} = (0,3 - 0,6) \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$ наблюдалось отсутствие разрушения, а при $\dot{\epsilon} = (0,7 - 2,0) \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$ – полное разрушение образцов. В сохранившихся после опытов образцах отсутствовала пластическая деформация, т. е. деформация была только упругой. В указанных условиях ВП не происходило.

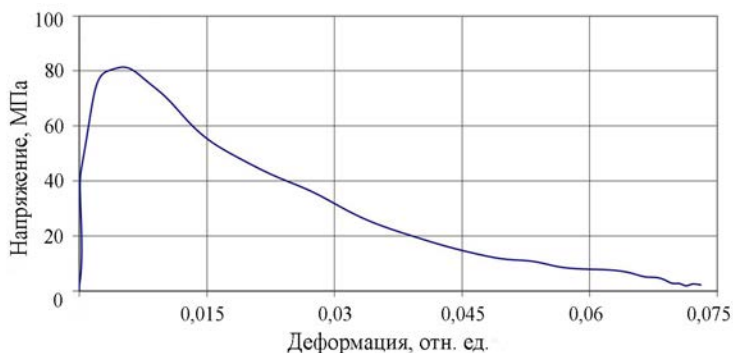


Рис. 3. Характерная диаграмма «напряжение–деформация» σ – ϵ разрушенного образца, $\dot{\epsilon} = 850 \text{ с}^{-1}$

На рис. 3 приведена характерная диаграмма «напряжение–деформация» для разрушенного образца.

В целом, полученные диаграммы сжатия σ – ϵ имеют вид, характерный для хрупких материалов: за упругим участком следует очень короткий участок пластического деформирования, где достигается напряжение разрушения и затем следует резкий спад напряжения.

В табл. 1 приведены результаты экспериментов по сжатию ВВ на основе октогена.

Таблица 1

Результаты экспериментов по исследованию динамического сжатия взрывчатого вещества на основе октогена

Номер опыта	Давление нагружающего импульса, МПа	Усилие в нагружающем импульсе $\cdot 10^3$ Н	Скорость деформации, с^{-1} (скорость нагружения $V_{\text{нагр}}$, м/с)	Состояние образца
1	45	14,0	250 (2,5)	Образец не разрушился
2	96	30,0	290 (2,9)	Образец не разрушился
3	96	31,0	470 (4,7)	Образец не разрушился
4	100	31,5	370 (3,7)	Появились трещина и небольшой откол на торце
5	110	35,0	600 (6,0)	Образец не разрушился
6	110	34,5	710 (7,1)	Образец разрушился
7	115	36,1	750 (7,5)	Образец разрушился
8	120	37,6	850 (8,5)	Образец разрушился
9	125	39,3	820 (8,2)	Образец разрушился
10	130	40,8	1200 (12,0)	Образец разрушился
11	470	147,6	1700 (17,0)	Образец разрушился
12	445	139,7	1720 (17,2)	Образец разрушился
13	560	175,8	2000 (20,0)	Образец разрушился

Из результатов опытов с разрушением образцов следует, что величина напряжения, при котором происходит разрушение образцов ВВ, составляет 60–80 МПа. Практически сразу после приложения нагрузки из-за хрупкости ВВ происходило растрескивание образца и образец по макротрещинам разрушался на мелкие фрагменты и порошок. Значительного скольжения материала ВВ по границам трещин не происходило из-за быстрого разлета фрагментов, и очаги реакции ВП не успевали сформироваться.

Эксперименты по изучению локализованного сдвига во взрывчатом веществе на основе октогена

Опыты проведены при скоростях деформации $\dot{\epsilon} = 200 - 2500 \text{ с}^{-1}$ (скорость нагружения $V_{\text{нагр}} = 4,8 - 50 \text{ м/с}$). Амплитуда нагружающих импульсов давлений составила $\sigma_i = 100 - 625 \text{ МПа}$ или усилий $P = (31,4 - 196,3) \cdot 10^3 \text{ Н}$. На рис. 4 приведено фото сборки со стержнями и обоймой, где размещен образец ВВ.

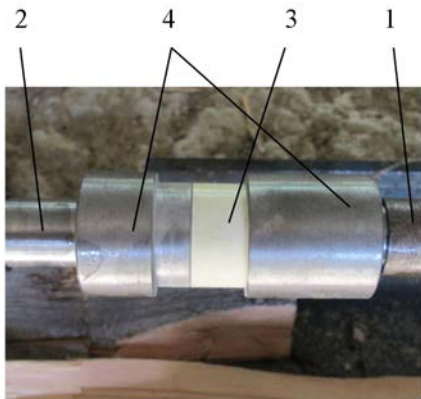


Рис. 4. Сборка со стержнями, вставленными в стальную обойму, где размещен образец ВВ: 1 и 2 – нагружающий и опорный стержни, 3 – образец, 4 – обойма (из двух частей)



Рис. 5. Диаметральное сечение образца ВВ после опыта на локализованный сдвиг: опыт № 1, $P = 31,4$ кН, $\dot{\epsilon} = 200$ с⁻¹ ($V_{\text{нагр}} = 4,0$ м/с)

В опытах при $\dot{\epsilon} = 200 - 550$ с⁻¹ (скорость нагружения $V_{\text{нагр}} = 4,8 - 10,0$ м/с), так же как в опытах на динамическое сжатие, ВП не происходило.

В экспериментах при $\dot{\epsilon} = 200 - 240$ с⁻¹ образцы деформировались без разрушения, происходило небольшое выдавливание на $\sim 0,5 - 0,8$ мм одной части образца относительно другой, а также появление трещин в основном на образующей поверхности. На рис. 5 приведено фото диаметрального сечения одного из не разрушенных образцов.

Из рис. 5 следует, что разрушение образцов происходило под воздействием сдвиговых и осевых напряжений. При этом в процессе разрушения образца по полосе сдвига появляются трещины в поперечном направлении. По образцам была оценена ширина полосы сдвига, которая составляла $\sim 50 - 100$ мкм. В процессе нагружения полосы сдвига развились в трещины.

При $\dot{\epsilon} = 400 - 550$ с⁻¹ ($V_{\text{нагр}} = 8,0 - 9,0$ м/с) наблюдалось разрушение образцов, при этом в процессе разрушения выдавливание одной части образца относительно другой происходило на сдвиговых деформациях. В целом, характер разрушения образцов был хрупкий.

Были проведены опыты и при более высоких скоростях деформации $\dot{\epsilon} = 1000 - 2500$ с⁻¹ (скорость нагружения $V_{\text{нагр}} = 20 - 50$ м/с). ВП в двух опытах при скоростях деформации $\dot{\epsilon} \sim 1000 - 1750$ с⁻¹ (давление 275–430 МПа) не происходило, образцы разрушались. В трех опытах при скоростях деформации $\dot{\epsilon} \sim 2100 - 2500$ с⁻¹ (давление 520–625 МПа) ВП наблюдалось.

На рис. 6 приведены записи деформаций на стержнях Гопкинсона одного из опытов со ВП. Для наглядности записи ограничены и представлены только в первой волне, проходящей через тензодатчики 7 (см. рис. 1).

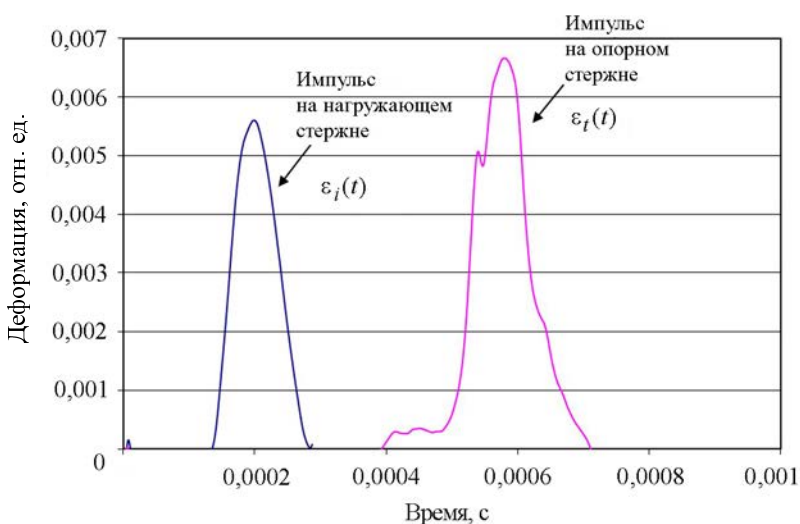


Рис. 6. Импульсы деформаций на стержнях Гопкинсона в одном из опытов с ВП

Из рис. 6 следует, что в этом опыте при ВП амплитуда возникающего давления составляет 715 МПа. Аналогичные записи наблюдались и в двух других опытах с ВП, где амплитуда возникающего давления составляла 815 и 710 МПа. В описанной постановке время от момента удара до начала ВП составляет 110–170 мкс.

В табл. 2 приведены результаты экспериментов.

Таблица 2

Результаты экспериментов по исследованию локализованного сдвига во взрывчатом веществе из октогена

Номер опыта	Давление нагружающего импульса, МПа	Усилие в нагружающем импульсе * 10 ³ Н	Скорость нагружения (стержня), м/с	Состояние образца	Амплитуда давления ВП, МПа
1	100	31,4	4,0	Выдавливание центральной части образца, трещины	–
2	110	34,5	4,8	То же	–
3	180	56,5	10,0	Разрушение образца	–
4	150	47,1	9,0	То же	–
5	130	40,8	11,0	То же	–
6	130	40,8	8,0	То же	–
7	275	86,3	20,0	То же	–
8	430	135,0	35,0	То же	–
9	625	196,3	50,0	ВП	715
10	550	172,7	44,0	То же	710
11	520	163,3	40,0	То же	815

Полученные данные соответствуют широко применяемой теории о возникновении ВП. В отличие от постановки опытов на сжатие здесь ограничение деформирования образца в радиальном направлении (см. рис. 2) способствовало формированию локализованного сдвига и сколь-

жению материала ВВ по границам микротрещин. Представленные экспериментальные данные будут полезны при разработке моделей инициирования ВП.

Эксперименты по изучению динамического сжатия взрывчатого вещества на основе ТАТБ

Было проведено четыре опыта. Интервал скоростей деформации составил $\dot{\epsilon} = (2,2 - 3,7) \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$ (скорость нагружения $V_{\text{нагр}} = 22 - 37 \text{ м/с}$), амплитуды нагружающих импульсов давлений составили $\sigma_i = 275 - 540 \text{ МПа}$ или усилий $(86,4 - 169,6) \cdot 10^3 \text{ Н}$.

Во всех опытах происходило разрушение образцов на мелкие фрагменты размером 0,5–3,5 мм и пылеобразные частицы ВВ, часть которых осела на установке ССГ в области размещения образца. Часть фрагментов, образовавшихся в одном из опытов, показана на рис. 7. В указанных условиях взрывчатого превращения не происходило.



Рис. 7. Часть фрагментов образца из ВВ на основе ТАТБ после одного из опытов на динамическое сжатие

На рис. 8 (см. также цветную вкладку) приведены диаграммы «напряжение–деформация», построенные по результатам этих опытов.

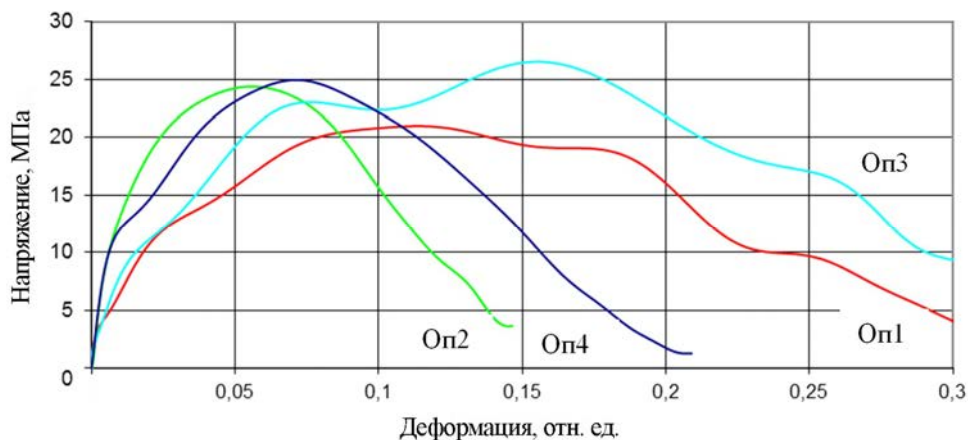


Рис. 8. Диаграммы «напряжение–деформация» σ – ϵ динамического сжатия ВВ на основе ТАТБ при $\dot{\epsilon} = 2200 - 3700 \text{ с}^{-1}$ ($V_{\text{нагр}} = 22 - 37 \text{ м/с}$): Оп. 1 – $\dot{\epsilon} = 3500 \text{ с}^{-1}$, Оп. 2 – $\dot{\epsilon} = 2200 \text{ с}^{-1}$, Оп. 3 – $\dot{\epsilon} = 3700 \text{ с}^{-1}$, Оп. 4 – $\dot{\epsilon} = 2500 \text{ с}^{-1}$

Диаграммы динамического сжатия ВВ на основе ТАТБ в целом имеют вид, характерный для материалов, обладающих пластичностью. По сравнению с ВВ на основе октогена в близких условиях нагружения ВВ на основе ТАТБ обладает большей пластичностью: если в опытах деформация разрушения для ТАТБ составляет 3,0–7,5 %, то для ВВ на основе октогена – 0,5–2,5 % (по средним значениям отличие составляет 3,5 раза). По имеющимся данным для ВВ на основе ТАТБ при статическом сжатии деформация разрушения тоже выше, чем для ВВ на основе октогена (~4,5 % против ~1,8 %, т. е. различие в 2,5 раза).

В табл. 3 приведены результаты экспериментов по сжатию ВВ на основе ТАТБ.

Таблица 3

Результаты экспериментов по исследованию динамического сжатия ВВ на основе ТАТБ

Номер опыта	Давление нагружающего импульса, МПа	Усилие в нагружающем импульсе $\cdot 10^3$ Н	Скорость деформации, c^{-1} (скорость нагружения $V_{нагр}$, м/с)	Состояние образца
1	415	130,3	3500 (35,0)	Разрушение образца
2	275	86,4	2200 (22,0)	Разрушение образца
3	430	135,0	3700 (37,0)	Разрушение образца
4	540	169,6	2500 (25,0)	Разрушение образца

Из результатов опытов следует, что величина напряжения, при котором происходит разрушение образцов ВВ на основе ТАТБ, составляет 22–27 МПа, что меньше, чем для ВВ на основе октогена (60–80 МПа) в $\sim 2,5$ раза. Эти данные согласуются с данными для статического сжатия ВВ на основе ТАТБ и для ВВ на основе октогена (31 МПа против 58 МПа).

Относительно отсутствия ВП в ВВ на основе ТАТБ можно отметить следующее. Очевидно, в описанной постановке при скоростях нагружения 22–37 м/с энергии нагружения не хватало на формирование очагов ВП, происходила диссипация энергии в процессе деформирования образца без образования локализованного течения. Далее происходили растрескивание образца и его разрушение на мелкие фрагменты и пылеобразные частицы. Это коррелируется с данными работы [10], где ВП в ВВ на основе ТАТБ при его нагружении сферическим осколком массой 12 г достигалось лишь при скоростях не ниже ~ 1000 м/с.

Эксперименты по изучению локализованного сдвига взрывчатого вещества на основе ТАТБ

Проведено четыре опыта на образцах размерами $\varnothing 30 \times 20$ мм. Скорости нагружения составили $V_{нагр} = 38,0 - 46,4$ м/с. Амплитуда нагружающих импульсов давлений составила $\sigma_i = 450 - 555$ МПа или усилий $(141,6 - 174,6) \cdot 10^3$ Н. ВП в опытах не происходило, образцы разрушались, разрушение носило вязкий характер. В трех опытах при $V_{нагр} = 38,4 - 44,8$ м/с часть образца вдавливалась в полость опоры обоймы, а часть оставалась в корпусе обоймы (схема опоры и корпуса обоймы приведена на рис. 2). Характер разрушения в этих опытах виден на рис. 9.



Рис. 9. Характер разрушения ВВ на основе ТАТБ при $V_{нагр} = 38,4 - 44,8$ м/с

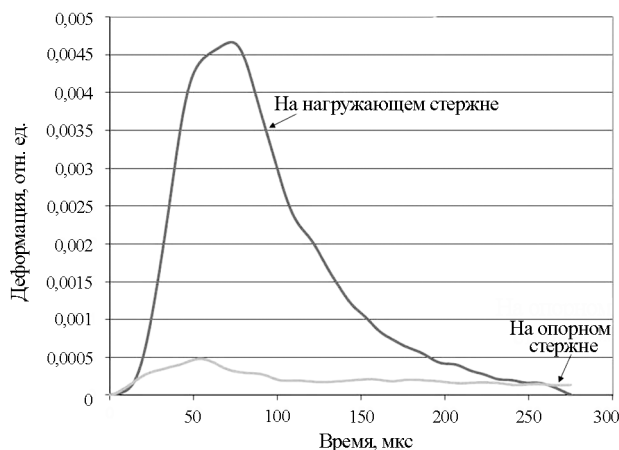


Рис. 10. Деформации, зарегистрированные на стержнях Гопкинсона в опыте при $V_{\text{нагр}} = 41,0$ м/с

На рис. 10 приведены типичные импульсы деформаций стержней, зарегистрированные в одном из опытов ($V_{\text{нагр}} = 41,0$ м/с).

Известно, что импульс деформации на опорном стержне $\varepsilon_i(t)$ характеризует реакцию ВВ на динамическое нагружение. Исходя из этого, можно отметить следующее. По импульсу $\varepsilon_i(t)$ видно, что процесс деформирования и разрушения имеет сложный характер. После роста сопротивления ВВ сдвиговым напряжениям и достижения максимума (за время 40–60 мкс) начинается разрушение образца. При этом рост сопротивления сдвиговым напряжениям имеет ступенчатый характер (см. рис. 10). Указанные особенности деформирования, по-видимому, связаны

со значительной вязкостью ВВ и сложным характером диссипации энергии в узкой зоне деформирования (в зоне сдвига одной части образца относительно другой, см. рис. 2). Сложный характер диссипации энергии, очевидно, обусловлен тем, что структура ВВ состоит из гранул и связующего материала, повышающего пластичность и вязкость ВВ. В табл. 4 приведены результаты опытов.

ВП в ВВ на основе ТАТБ в описанных условиях нагружения не происходило, очевидно по той же причине, что и в опытах на сжатие. Хотя локализованное течение материала и имело место, однако энергии нагружения не хватало на формирование очагов ВП и происходила лишь диссипация энергии в процессе деформирования образца.

Как отмечено выше, для возникновения ВП в ТАТБ необходима энергия нагружения сферическим осколком массой 12 г со скоростью ~ 1000 м/с [10], что составляет ~ 12 кДж. В опытах с ВВ на основе ТАТБ на локализованный сдвиг максимальная величина энергии составила лишь ~ 2 кДж (в опытах на сжатие максимальная величина энергии составила 3,5 кДж).

Таблица 4

Результаты экспериментов по исследованию локализованного сдвига в ВВ на основе ТАТБ

Номер опыта	Давление нагружающего импульса, МПа	Усилие в нагружающем импульсе $\cdot 10^3$ Н	Скорость нагружения (стержня), м/с	Состояние образца
1	450	141,6	38,4	Разрушение образца (см. рис. 9)
2	505	158,6	41,0	Разрушение образца (см. рис. 9)
3	535	168,0	44,8	Разрушение образца (см. рис. 9)
4	555	174,6	46,4	Разрушение образца с отделением срединной части образца

Заключение

1. По методу ССГ проведены эксперименты по изучению динамического сжатия двух ВВ на основе октогена и на основе ТАТБ в диапазоне амплитуд давлений нагружающих импульсов 45–560 МПа и скоростей деформации $\dot{\epsilon} = (250 - 3700) \text{ с}^{-1}$. Получены диаграммы «напряжение–деформация» σ – ϵ .

В указанных условиях нагружения ВВ на основе ТАТБ в 3,5 раза пластичнее, чем ВВ на основе октогена (в среднем, 5,5 % против 1,5 %) и в 2,5 раза менее прочны (в среднем, 65 МПа против 26 МПа).

В опытах на сжатие ВП не выявлено, что, по-видимому, связано с разрушением образцов по макротрещинам без скольжения берегов трещин в случае с ВВ на основе октогена и диссипацией энергии в вязком материале без образования локализованного течения в процессе деформирования образцов ВВ на основе ТАТБ. В этих условиях энергии нагружения не хватало на формирование очагов ВП.

2. По модернизированному методу ССГ проведены эксперименты по исследованию локализованного сдвига в двух ВВ на основе октогена и ТАТБ при скоростях нагружения 4,0–50 м/с и усилиях 100–625 кН.

В ВВ на основе октогена ВП проявлялось при скоростях нагружения 40–50 м/с. По зарегистрированным сигналам выявлены особенности инициирования ВП. В частности, перед началом ВП происходит деформирование образцов в течение 110–170 мкс, нагружающий стержень внедряется в образец на 5–6,5 мм, амплитуды давления ВП в опытах составили 710–815 МПа, что выше, чем амплитуды нагружающих импульсов. Последние перечисленные данные получены впервые.

ВП в опытах с ВВ на основе ТАТБ не происходило, образцы разрушались, разрушение носило вязкий характер.

3. Полученные данные будут полезны в деятельности ЯОК, в частности для выработки критериев безопасности в аварийных ситуациях. Полезны они будут и для моделирования поведения ВВ при воздействии динамических нагрузок, а также для дальнейшей расчетно-теоретической разработки механизма развития ВП от очагов реакции, вызванных сдвиговыми деформациями с образованием трещин и скольжением материала ВВ по границе трещины.

Список литературы

1. Белов Г. В., Базаров Ю. Б., Екимчев С. Н. и др. Влияние скорости ударника на параметры взрыва образцов из двух типов бризантных ВВ // Сб. тез. докл. XV Харитоновских чтений. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2013. С. 56.

2. Pushkov V. A., Abakumov A. I., Yurlov A. V. et al. Response of HMX-based HE to low-velocity loading by steel cylindrical impactor // Proc. of the APS Shock Conference. AIP Press, New York, 2011. Part I. P. 418–421.

3. Abakumov A. I. et al. Numerical-experimental research of deformation of energetic materials in conditions of low-velocity loading in tests with split Hopkinson pressure bar // Proc. of the IX Khariton's Readings. Sarov: RFNC-VNIIEF, 2007. P. 215–226.

4. Chidester S. K., Tarver C. M., DePiero A. H., Garza R. G. Single and multiple impact ignition of new and aged high explosives in the Steven impact test // *APS Shock Conference Proc.* AIP Press, New York, 2000. P. 663–666.

5. Vandersall K. S. et al. Experimental and modeling studies of crush, puncture, and perforation scenarios in the steven impact test // *Proc. of the 12th Int. Det. Sym.* 2002. Ampersand Publ. Group, Akron, Ohio, USA, 2003. P. 131–139.

6. Idar D. J. et al. Low amplitude insult project: PBX 9501 high explosive violent reaction experiments // *Proc. of the 11th Int. Det. Sym.* 1998. Ampersand Publ. Group, Akron, Ohio, USA, 2000. P. 101–110.

7. Belov G. V., Gushanov A. R., Volodina N. A. et al. Numeral simulation of experiments on the low-velocity impact on octogen-based HE using the explosive transformation initiation kinetics // *Abstracts of Seven International Meeting on New Models and Hydrocodes for Shock Waves Processes in Condensed Matter.* Estoril, Portugal, 2008. P. 37–38.

8. Джексон Р., Грин Л., Барлетт Р. и др. Закономерности инициирования и распространения детонации во взрывчатом веществе ТАТБ // Сб. «Детонация и взрывчатые вещества». М.: Мир, 1981. С. 323–342.

9. Mas E. M., Clements B. E., Blumenthal W. R. et al. Applying micro-mechanics to finite element simulations of split Hopkinson pressure bar experiments on high explosives // *Proc. of the APS Shock Conference.* AIP Press, New York, 2001. P. 539–542.

10. Белов Г. В., Базаров Ю. Б., Екимчев С. Н. и др. Влияние скорости ударника на параметры взрыва образцов из двух типов бризантных ВВ // Сб. докл. XV Харитоновских чтений. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2013. С. 111–118.

Response of HMX-based and TATB-based HE to Dynamic Loading by Using Split Hopkinson Pressure Bar Method

A. M. Vasil'ev, A. V. Yurlov, V. A. Pushkov, T. G. Naidanova, A. N. Tsibikov

The results of experiments on research of HMX-based and TATB-based HE under loading by using Split Hopkinson Pressure Bar method are presented. The data on dynamic compression diagrams and localized shear at strain rates $(0,2-3,7) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ are found. The values of dynamic strength and plasticity under compression are observed. Some questions of initiation of explosive transformation under dynamic deformation are considered.

Использование терагерцевой спектрометрии для исследования механизмов термического разложения энергетических материалов

Представлены результаты экспериментов по исследованию возможностей метода нестационарной спектрометрии в терагерцевом частотном диапазоне для определения в реальном времени состава газообразных продуктов разложения энергетических материалов. Получены зависимости аналитического сигнала на линиях основных продуктов разложения нитрата аммония и взрывчатого вещества (ВВ) ТЭН от времени.

И. А. Лукьяненко, Ю. В. Шейков, В. Л. Вакс*,
Е. Г. Домрачева*, А. А. Яблоков*,
С. А. Вахмистров, А. Л. Михайлов

Введение

Исследование кинетики термолиза энергоемких материалов является чрезвычайно важной задачей, без решения которой практически невозможно прогнозирование поведения этих материалов при длительном хранении и в нештатных ситуациях.

В настоящее время изучение кинетики термического разложения взрывчатых веществ осуществляется, в основном, с помощью таких методов как манометрия, термогравиметрия (ТГА) и дифференциальная сканирующая калориметрия (ДСК). Все они хорошо зарекомендовали себя при решении исследовательских и прикладных задач на различных этапах жизненного цикла ВВ: они реализованы в различных методиках, их применение регламентируется нормативной документацией, они предоставляют достаточно точную информацию о кинетических откликах, получаемых при разложении ВВ (давление газообразных продуктов, изменение массы вещества, тепловые потоки), но при этом имеют два существенных ограничения. Первым является то, что

* ИФМ РАН, г. Нижний Новгород.

© Физика горения и взрыва. 2018. Т. 54, № 5. С. 51.

получаемая информация отражает интегральные характеристики процессов, которые не соотнесены с конкретными стадиями химических реакций. Без анализа продуктов реакций остаются скрытыми их механизмы. Вторым ограничивающим фактором на данный момент является чувствительность указанных методов. С их помощью возможна регистрация процессов, происходящих в ВВ при температурах, далеких от реальных температур хранения и эксплуатации. Это влечет за собой необходимость прибегать к экстраполяции, что снижает достоверность кинетических моделей и, как следствие, результатов оценок прогнозируемых сроков хранения и эксплуатации. Чтобы обойти эти ограничения, важно найти метод, который бы позволял в реальном времени, с высокой чувствительностью и с высокой селективностью проводить анализ газообразных продуктов, образующихся при разложении ВВ.

Одним из возможных решений этой задачи является совмещение методов ТГА-ДСК со спектральным анализом – инфракрасной (ИК) или масс-спектрометрией (МС). Преимущества такого подхода очевидны: исследователь получает данные и об изменении массы ВВ, и о термохимических процессах, и о составе газообразных продуктов на каждой стадии. Это позволяет более или менее обоснованно предлагать механизмы химических процессов, происходящих при разложении.

В настоящее время существуют серийные приборы, реализующие, например, схему совмещенного анализа ТГА-ДСК-ИК-Фурье. Такая схема широко применяется в технологии полимеров, фармацевтической промышленности. В ИФВ РФЯЦ-ВНИИЭФ этот метод также активно внедряется, на данный момент получен патент на способ оценки совместимости ВВ с конструкционными материалами с использованием этого метода [1]. Однако значительная ширина полос поглощения в ИК-спектрах может накладывать ограничения на селективность анализа, количественный анализ при этом также затрудняется.

Метод МС также ограниченно пригоден к исследованию продуктов разложения ВВ: несмотря на беспрецедентно низкий предел обнаружения (для анализа бывает достаточно пикограмма вещества), нетривиальной задачей является расшифровка масс-спектров сложных смесей.

Таким образом, продолжается поиск новых методов анализа, способных дополнить возможности существующих.

1. Нестационарная спектроскопия в терагерцевом диапазоне при анализе продуктов разложения взрывчатого вещества.

Преимущества и аппаратная реализация

В последние десятилетия для целей химико-аналитических исследований ведется активное освоение спектроскопии в терагерцевом диапазоне электромагнитного излучения. Терагерцевый диапазон в спектре электромагнитного излучения располагается между ИК-излучением и микроволнами и соответствует частотам 0,1–10 ТГц. В нем расположены спектральные линии вращательных и колебательных переходов молекул различной природы, а также переходов, связанных с межмолекулярными взаимодействиями. Для анализа газовой фазы продуктов разложения ВВ перспективно использование спектроскопии в низкочастотной области этого диапазона (так называемом субтерагерцевом диапазоне), содержащей узкие интенсивные линии, соответствующие вращательным переходам небольших молекул.

В институте физики микроструктур РАН (г. Н. Новгород) разработана схема нестационарной спектроскопии, которая позволяет вплотную приблизиться к пределу чувствительности и раз-

решающей способности в этом диапазоне [2]. В соответствии с предложенной схемой, монохроматическое излучение проходит через исследуемый разреженный газ, который поглощает часть излучения с формированием наведенной макроскопической поляризации. Фаза излучения периодически меняется на противоположную, при этом происходит перестройка наведенных диполей с образованием диполей новой геометрии. Этот процесс сопровождается переизлучением энергии на рабочей частоте, причем интенсивность переизлучения равна энергии, поглощенной этим же числом молекул.

При сотрудничестве ИФВ РФЯЦ-ВНИИЭФ и ИФМ РАН разработан и изготовлен действующий макет спектрометра терагерцевого диапазона частот, работающий по такой схеме, предназначенный для исследования термического разложения ВВ.

В разработанном действующем макете спектрометра (схема представлена на рис. 1) фазоманипулированное монохроматическое излучение создается при помощи генератора на основе лампы обратной волны, проходит через аналитический объем (кювету) и регистрируется детектором на основе квантовых сверхрешеток. К кювете присоединен реакционный объем (колба), куда помещается исследуемый образец. Колба и кювета изготовлены из кварцевого стекла и соединяются с помощью шлифа. С помощью откачной станции в реакционном и аналитическом объемах спектрометра поддерживается давление на уровне 0,1–0,5 Па. В процессе эксперимента они прогреваются до 350–400 °С при помощи высокоомной обмотки, температура контролируется термосопротивлениями, расположенными на наружной поверхности стекла. Спектрометр управляется программным обеспечением на базе операционной системы Windows XP.

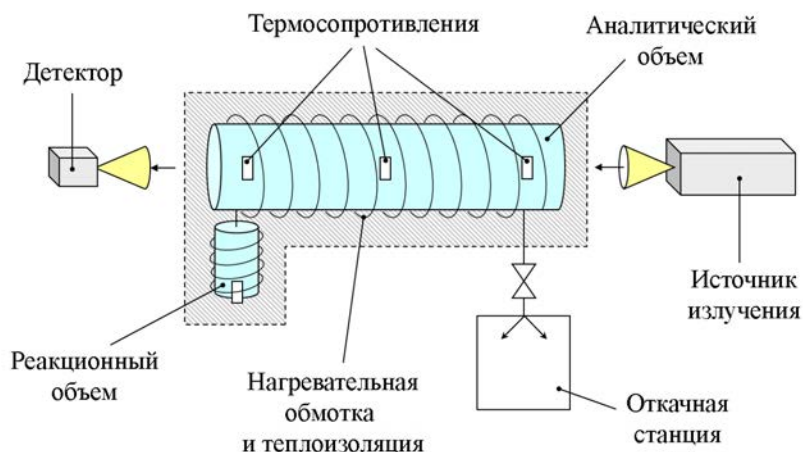


Рис. 1. Принципиальная схема действующего макета спектрометра субтерагерцевого диапазона частот

Два основных режима работы спектрометра – это сканирование спектрального диапазона и регистрация сигнала на одной частоте с течением времени. Регистрация сигнала осуществляется параллельно с нагревом вещества, нагрев можно проводить в любом интересующем режиме: линейный нагрев, быстрый нагрев до постоянной температуры и др. Первый режим предназначен для поиска неизвестных линий веществ и контроля формы известных линий. Во втором – регистрируется зависимость поглощения на выбранной спектральной линии от времени. Поскольку коэффициент поглощения пропорционален концентрации, это позволяет получать кинетические кривые, характеризующие процесс образования продукта, поглощающего излучение на выбранной частоте.

Несомненное преимущество метода субтерагерцевой спектроскопии – высокая селективность. Полуширина спектральных линий составляет, как правило, 0,5–1 МГц, рабочий диапазон прибора – 115–175 ГГц. Таким образом, спектрометр обеспечивает разрешающую способность, позволяющую независимо обнаруживать множество веществ в сложной смеси.

Значения пределов обнаружения, характеризующие чувствительность метода, можно предварительно оценить путем соотнесения литературных значений силы спектральных линий и расчетных концентраций веществ, при которых сигнал на этих линиях соответствует утроенному стандартному отклонению измеренного фонового сигнала. При объеме вакуумной системы 4 л оценка пределов обнаружения составляет от десятков пикограммов до десятков нанограммов (таблица). Следует отметить, что такой расчет подразумевает ряд допущений, и в настоящее время проводятся исследования, направленные на уточнение соответствия аналитического сигнала концентрациям.

Оцененные значения пределов обнаружения на некоторых линиях типичных продуктов разложения энергоемких материалов

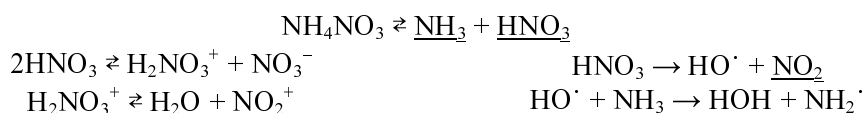
Соединение	Частота, МГц	Предел обнаружения, г	Соединение	Частота, МГц	Предел обнаружения, г
NH ₃	140141,81	8·10 ⁻¹⁰	NO ₂	161361,53	2·10 ⁻⁸
HNCO	153865,09	4·10 ⁻¹¹		167031,00	1·10 ⁻⁸
	131885,73	3·10 ⁻¹¹		167462,66	7·10 ⁻⁹
HNO ₃	144004,24	6·10 ⁻¹⁰	H ₂ CO	140839,50	1·10 ⁻¹¹
	156523,19	1·10 ⁻⁹		145602,95	1·10 ⁻¹¹
	169076,44	8·10 ⁻¹⁰		150498,33	1·10 ⁻¹¹
N ₂ O	125613,67	6·10 ⁻¹⁰	(CH ₂) ₂ O	157163,95	2·10 ⁻¹¹
	150735,05	1·10 ⁻¹⁰		168880,20	6·10 ⁻¹¹
	150795,01	3·10 ⁻⁹		170317,06	3·10 ⁻¹¹
NO	150176,48	1·10 ⁻⁹	HCN	123107,48	1·10 ⁻⁸
	150198,76	6·10 ⁻⁹		133737,26	8·10 ⁻⁹
	150439,12	8·10 ⁻⁹		144797,28	1·10 ⁻⁸

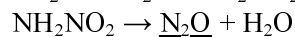
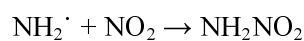
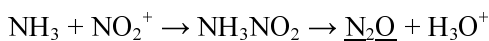
2. Экспериментальные результаты

2.1. Методические эксперименты по исследованию разложения нитрата аммония

В качестве модельного энергетического вещества для методических экспериментов был выбран нитрат аммония.

Первичной при разложении нитрата аммония является обратимая реакция диссоциации, протекающая в конденсированной фазе. Дальнейшие процессы упрощенно описываются двумя схемами [3]:





При относительно низких температурах (до 200–250 °С) и в конденсированной фазе большее значение имеет ионный механизм, в газовой фазе при высоких температурах преобладают свободнорадикальные процессы. Соответственно, продукты, присутствие которых ожидается в экспериментах по разложению нитрата аммония, – это NH_3 , HNO_3 и оксиды азота (на схеме подчеркнуты).

Разложение нитрата аммония исследовали с использованием спектрометра, описанного в разд. 1, в двух режимах: линейный нагрев со скоростью ~ 10 °С/мин. и быстрый нагрев до 167 °С (несколько ниже температуры плавления). Кювета заранее прогревалась до 200 °С для предотвращения оседания пробы на холодной поверхности.

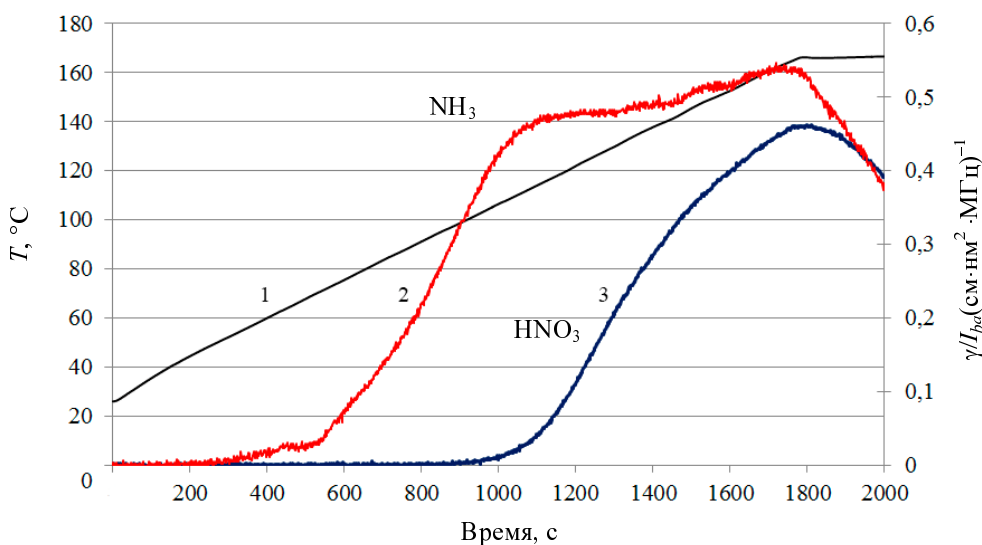


Рис. 2. Зависимости температуры колбы (1) и аналитического сигнала от времени на спектральных линиях NH_3 (140141,81 МГц) (2) и HNO_3 (156523,19 МГц) (3) при разложении навесок нитрата аммония массой 5 мг в режиме линейного нагрева со скоростью ~ 5 °С/мин. Значения поглощения нормированы на литературные значения силы линий

На рис. 2 (см. также цветную вкладку) представлены зависимости поглощения на линиях аммиака и азотной кислоты от времени, зарегистрированные при нагреве нитрата аммония массой 5 мг со скоростью ~ 10 °С/мин. до 167 °С. Наблюдается явное разделение появления NH_3 и HNO_3 во времени, причем аммиак появляется при более низких температурах. Аналитические сигналы продуктов монотонно увеличиваются с ростом температуры и снижаются после прекращения нагрева.

При навеске 10 мг (полученные данные изображены на рис. 3, см. также цветную вкладку) на кривых проявляются дополнительные пики (с максимумами при 115 °С для NH_3 и 125 °С для HNO_3), после них продолжается рост сигналов, также заканчивающийся при прекращении нагрева.

С учетом данных о температурной зависимости давления насыщенных паров нитрата аммония [4], наиболее обоснованной представляется следующая интерпретация полученных зависимостей. Максимумы на кривых соответствуют полному испарению нитрата аммония с диссоциацией, при этом образующиеся аммиак и азотная кислота частично откачиваются из вакуумной системы (снижающиеся ветви пиков на рис. 3), а частично сорбируются на стенках колбы, имеющей

меньшую температуру по сравнению с кюветой. Дальнейший рост сигналов обусловлен перераспределением продуктов в вакуумной системе спектрометра: из постепенно нагревающейся колбы продукты переходят в газовую фазу. Спад сигнала после прекращения роста температуры объясняется равномерной десорбцией и откачкой продуктов из вакуумной системы, части которой не меняют температуру.

Примечательно то, что концентрации вторичных продуктов разложения – оксидов азота N_2O и NO_2 – значительно ниже концентраций NH_3 и HNO_3 . На протяжении всего эксперимента их сигналы едва превышали фоновый сигнал. Это свидетельствует о том, что в данном приборе реализуется режим, близкий к высоковакуумному пиролизу, при котором протекают преимущественно первые стадии процессов, после чего молекулы взаимодействуют мало.

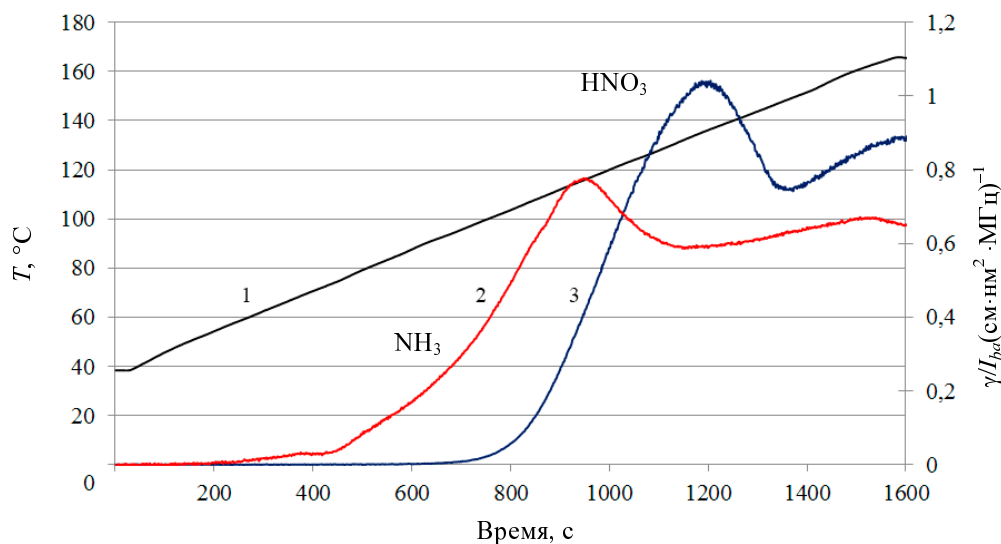


Рис. 3. Зависимости температуры колбы (1) и аналитического сигнала от времени на спектральных линиях NH_3 (140141,81 МГц) (2) и HNO_3 (156523,19 МГц) (3) при разложении навесок нитрата аммония массой 10 мг в режиме линейного нагрева со скоростью ~ 5 °C/мин. Значения поглощения нормированы на литературные значения силы линий

2.2. Эксперименты по исследованию разложения взрывчатого вещества ТЭН

В экспериментах по разложению ВВ ТЭН удалось надежно обнаружить линии следующих продуктов: формальдегид (H_2CO), монооксид углерода (CO), монооксид азота (NO), диоксид азота (NO_2), окись этилена ($(CH_2)_2O$), циановодород (HCN), изоциановая кислота ($HNCO$). Это хорошо согласуется с литературными данными [5] и результатами, полученными в ИФВ ранее при помощи ИК-фурье-спектрометрии.

Провели серию экспериментов по разложению ВВ ТЭН в условиях линейного нагрева, аналогично нитрату аммония. Регистрировали поглощение на линиях формальдегида, монооксида азота и диоксида азота, нагрев осуществляли со скоростью 10 °C/мин, масса навески составляла 5 мг. Полученные графики изображены на рис. 4 (см. также цветную вкладку).

В отличие от нитрата аммония, ВВ ТЭН способно к сублимации без заметного разложения (в особенности, в условиях вакуума), и пики, наблюдающиеся на кривых, в основном соответ-

вуют разложению испаряющегося ВВ в уже прогретой кювете. Первый пик в случае формальдегида и оксида азота (IV) имеет место при температурах от ~ 70 °С (точка, после которой сигнал превышает значение утроенного стандартного отклонения сигнала в начальном участке) до ~ 200 °С. Второй пик (от 200 °С) проявляется тогда, когда температура колбы выше, чем температура кюветы. Этот факт позволяет отнести его к процессам перераспределения продуктов и оставшихся паров пробы между колбой и кюветой.

Раннее снижение концентрации монооксида азота, сигнал которого начинает появляться при ~ 60 °С и снижаться при 100 °С, связано, по-видимому, с окислением его кислородом, постоянно находящимся в кювете.

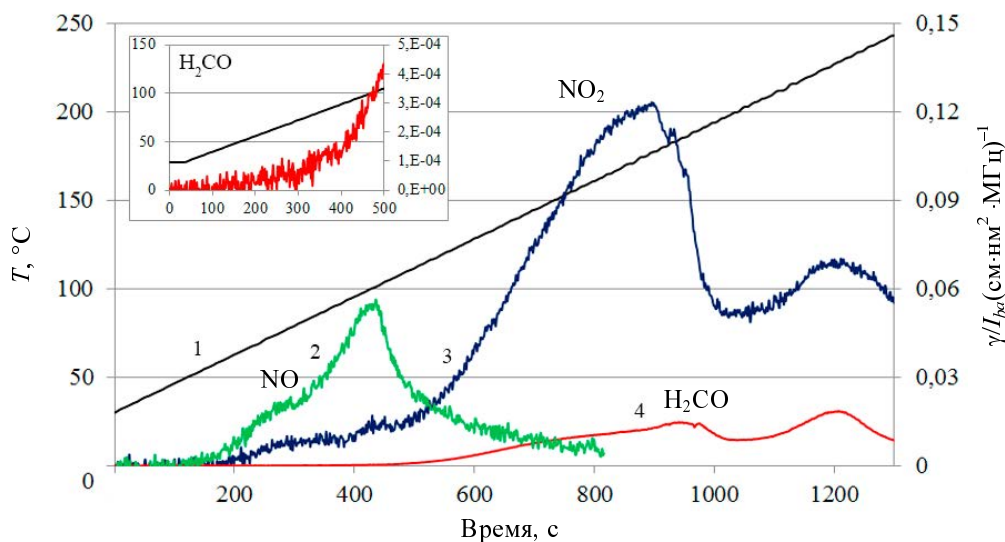


Рис. 4. Зависимости аналитического сигнала от времени на спектральных линиях NO (150580,56 МГц), NO₂ (156264,65 МГц) и H₂CO (140839,50 МГц) при разложении навесок ВВ ТЭН массой 5 мг в режиме линейного нагрева со скоростью 10 °С/мин. Значения поглощения нормированы на литературные значения силы линий

Заключение

Впервые для исследования механизмов разложения энергоемких материалов применили метод нестационарной спектроскопии в субтерагерцевом частотном диапазоне.

С использованием действующего макета спектрометра, реализующего данный метод, провели исследование кинетики выхода основных продуктов разложения нитрата аммония и ВВ ТЭН. В частности:

- в спектре газовой фазы продуктов разложения ВВ ТЭН обнаружены линии основных продуктов разложения: формальдегид, монооксид углерода, монооксид азота, диоксид азота, окись этилена, циановодород, изоциановая кислота;

– для процесса разложения нитрата аммония в режиме линейного нагрева получены кривые изменения аналитического сигнала во времени на спектральных линиях азотной кислоты, аммиака и оксида азота (I);

– получены аналогичные кривые для оксидов азота (II) и (IV) и формальдегида при разложении ВВ ТЭН в аналогичных условиях.

Результаты, полученные в экспериментах по разложению нитрата аммония и ВВ ТЭН, соотносятся с современными представлениями о механизмах этих процессов.

Таким образом, показана перспективность применения нестационарной спектроскопии высокого разрешения в субтерагерцевом частотном диапазоне для анализа газовой фазы продуктов разложения энергоемких материалов с целью исследования кинетики их термоллиза.

Список литературы

1. Пат. 2589708, МПК G01N 33/22, G01N 21/35. Способ оценки совместимости взрывчатых веществ с конструкционными материалами и устройство для его реализации / О. М. Балякина, Н. А. Мирошниченко, А. Н. Таланова и др. // Бюллетень. 2016. № 17.

2. Brailovsky A. B. Millimeter range spectrometer with phase switching-novel method for reaching of the top sensitivity // Int. J. Infrared and Millimeter Waves. 1999. Vol. 20, N 5. P. 883–896.

3. Chaturvedi S. Review on Thermal Decomposition of Ammonium Nitrate // J. Energ. Mater. 2013. Vol. 31, N 1. P. 1–26.

4. Vapor pressure of ammonium nitrate / J. D. Brandner, N. M. Junk, J. W. Lawrence, J. Robins // Journal of Chemical and Engineering Data. 1962. Vol. 7, N. 2. P. 227.

5. Chambers D. M. Perspectives on PentaerythrolTetranitrate (PETN) Decomposition / D. M. Chambers, C. L. Brackett, O. D. Sparkman // Lawrence Livermore National Laboratory. 2002. UCRL-JC-148956.

Use of Terahertz Spectrometry to Study the Mechanisms of Thermal Decomposition of Energetic Materials

**I. A. Luk'yanenko, Yu. V. Sheikov, V. L. Vaks, E. G. Domracheva, A. A. Yablokov,
S. A. Vakhmistrov, A. L. Mikhaylov**

Experimental results presented on using nonstationary spectrometry in a terahertz frequency range to determine the composition of gaseous products of decomposition of energy materials. Dependences of analytical signals on lines of the main products of ammonium nitrate and PETN decomposition on time are obtained.

Исследование кинетики термического разложения энергетических материалов с использованием спектроскопии высокого разрешения терагерцевого частотного диапазона

В. Л. Вакс^{*,**}, Е. Г. Домрачева^{*,**},
Г. А. Соегова^{**}, А. А. Яблоков^{*,**},
И. А. Лукьяненко, Ю. В. Шейков

В настоящее время актуально исследование кинетики химических реакций для решения задач физики взрыва, определения параметров роста hi-tech структур, определения сроков хранения веществ. Кинетика процессов термического разложения энергетических материалов (на примере нитрата аммония) и детектирование продуктов разложения, как при комнатной температуре, так и при их нагреве в линейном и изотермическом режимах, а также исследование стадийности процессов разложения были изучены с использованием метода терагерцевой спектроскопии высокого разрешения. Зарегистрированы линии поглощения аммиака, закиси азота, азотной кислоты. Определены время и температура выхода каждого из продуктов разложения, а также порядок реакции. Показана перспективность применения метода терагерцевой спектроскопии высокого разрешения для исследования кинетики термического разложения энергетических материалов, определения стадийности процесса и построения достоверных кинетических моделей.

Введение

Исследование кинетики термического разложения энергетических материалов является одним из важнейших направлений химии и физики, поскольку именно кинетические модели, получаемые из экспериментов по термическому разложению, позволяют прогнозировать поведение таких материалов при длительном хранении и в аварийных условиях. Процессы разложения типичных энергоемких материалов сложны и зачастую, несмотря на долгую историю их изучения, не имеют подробного теоретического описания. Осложняет проблему прогнозирования стабильности энергоемких материалов и то, что применяющиеся в России и за рубежом феноменологиче-

* Институт физики микроструктур РАН.

** Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского, г. Нижний Новгород

ские и формально-кинетические модели строятся на основе экспериментальных данных, полученных при высокотемпературном разложении, и далеко не всегда могут быть корректно экстраполированы на рабочие температуры жизненного цикла материала. По этой причине целью работы была разработка высокочувствительных и высокоселективных методов непрерывного анализа газообразных (в т. ч. короткоживущих) продуктов разложения энергоемких веществ в широком интервале температур.

Методы исследования кинетики термического разложения энергетических материалов

На данный момент наиболее обширные сведения о кинетике термического разложения взрывчатых веществ получены при помощи таких методов, как манометрический анализ (МА, manometry, EG, evolved gas), термогравиметрия (ТГ, TGA, termogravimetric analysis) и дифференциально-сканирующая калориметрия (ДСК, DSC, differential scanning calorimetry) [1–3]. Такие методы позволяют получать сведения либо об общем количестве прореагировавшего или выделившегося вещества, либо о тепловых эффектах протекающих процессов, вследствие чего получаемые данные далеко не всегда удается достоверно соотнести с реальными химическими процессами, протекающими в материале. Этой теме посвящены работы [4, 5]. Изложенные в них данные описывают разложение наиболее распространенных взрывчатых веществ при температурах, превышающих температуры их плавления или близких к ним (более 100–200 °С). Однако, отчетливо наблюдаемая зависимость эффективной энергии активации этих процессов от температуры и глубины разложения явно указывает на смену лимитирующих стадий в зависимости от условий и, следовательно, на некорректность прямой экстраполяции этих кинетических моделей в низкотемпературную область. Для распространения формально-кинетических моделей, получаемых из этих данных, на более низкие температуры требуются изучение и учет стадийности протекающих процессов. Данная задача упомянутыми методами однозначно решена быть не может, так как сущность этих методов сводится к получению физических характеристик процесса (суммарное давление продуктов реакции – EG, масса твердого остатка – TGA, тепловые потоки – DSC), связь которых с конкретными стадиями и элементарными реакциями разными исследователями может трактоваться по-разному [6]. Помимо этого, с понижением температуры эксперимента погрешность данных, получаемых при помощи упомянутых методов, значительно растет.

Чрезвычайно перспективным направлением развития экспериментальной техники стало совмещение методов, описанных выше, с ИК- и масс-спектрометрией [7]. В настоящее время серийно выпускаются приборы, в которых синхронно с ТГА- и ДСК-анализом пробы вещества производится получение ИК-спектра газообразных продуктов его разложения. Такое исполнение эксперимента позволяет соотносить физические явления, наблюдаемые в пробе, с конкретным продуктом, линии которого появляются в спектре газовой фазы, тем самым подтверждая или опровергая превалирование того или иного процесса при интересующей температуре. Кроме того, совмещение нескольких методов анализа в одном эксперименте повышает достоверность и экспрессность подобных исследований [2]. Серьезным ограничением для подобных методик является то, что селективность ИК-фурье-спектроскопии оказалась недостаточной для эффективного разрешения короткоживущих компонентов в сложных газовых смесях. Также проведенные исследования показывают, что чувствительность ИК-фурье-спектроскопии позволяет изучать

распад взрывчатого вещества лишь при глубинах разложения от ~10 %, что вновь поднимает вопрос о достоверности экстраполяции получаемых кинетических моделей на условия, близкие к условиям, например, хранения.

В последние годы наблюдается интенсивное развитие и совершенствование средств спектроскопии в терагерцевом и субтерагерцевом диапазонах частот. Для диапазона 0,1–15 ТГц разрабатываются методы спектроскопии, визуализации и детектирования, способные найти широкое применение в области обеспечения безопасности [8]. Особый интерес для аналитической химии представляет субтерагерцевый (субмиллиметровый) диапазон, содержащий линии вращательных и колебательных переходов многих органических и неорганических молекул. В отличие от ИК-спектроскопии, спектроскопия в субмиллиметровом диапазоне обладает крайне высокой селективностью (относительная ширина спектральных линий составляет менее 1 МГц), при этом интенсивность регистрируемых линий для большинства небольших молекул значительно превышает интенсивности линий в микроволновом диапазоне, что обеспечивает предельно высокую чувствительность данного метода. За счет этого субмиллиметровая спектроскопия успешно справляется с задачами определения чрезвычайно малых количеств веществ, в т. ч. примесей в высокочистых веществах [9]. На данный момент в открытых источниках не удается найти работы по применению совмещенного ТГА-ДСК-ИК-анализа к исследованию кинетики разложения взрывчатых веществ, что указывает на важность разработки этой темы. Использование же терагерцевого и субтерагерцевого излучения в исследованиях кинетики термодеструкции не упоминается в литературе даже применительно к другим, органическим и неорганическим, веществам.

Разработанные в ИФМ РАН методы терагерцевой спектроскопии высокого разрешения и спектрометры на их основе позволяют не только детектировать продукты термического разложения взрывчатых веществ в режиме реального времени [10], но и отслеживать динамику содержания веществ в газовой смеси, что актуально для кинетических исследований [11].

Экспериментальная часть

Для исследования кинетики термического разложения энергетических материалов был разработан реакционный объем спектрометра терагерцевого диапазона частот, обеспечивающий задаваемый и контролируемый нагрев аналитической ячейки и системы напуска в интервале температур от 20 до 300 °С как при постоянной температуре, так и при линейном нагреве.

Реакционный объем состоит из системы напуска исследуемого вещества, аналитической ячейки, системы нагрева и датчиков температуры. Система напуска представляет собой кварцевую колбу, которая через притертый шлиф соединяется с патрубком аналитической ячейки. Аналитическая ячейка – это кварцевая труба диаметром 50 мм с двумя патрубками, один из которых предназначен для подсоединения системы напуска, а другой – для подсоединения системы вакуумирования. Откачка реакционного объема до рабочего давления 0,001 мбар осуществляется с использованием откачной станции Pfeiffer Hi-Cube Eco через систему вакуумных соединений (рис. 1).

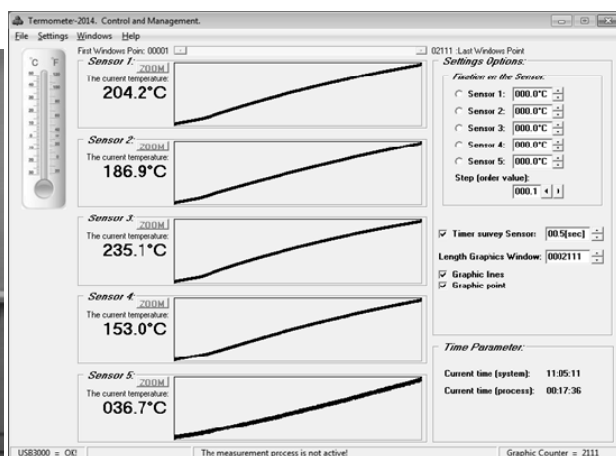


Рис. 1. Экспериментальная установка для исследования кинетики термического разложения энергетических материалов

Рис. 2. Скриншот программы для управления и контроля нагрева реакционного и измерительного объемов

Исследуемое вещество (см. рис. 1) помещается на дно колбы. При нагревании вещество в колбе испаряется и разлагается, и наша задача заключается в определении состава получившейся газовой смеси. Во избежание осаждения горячих продуктов разложения на холодных стенках измерительного объема необходимо прогревать весь тракт: колбу, соединение колбы с ячейкой и ячейку; а также использовать минимум разборных соединений, которые можно прогревать до необходимой температуры. В прогреваемой части системы имеется единственное притертое соединение колбы и ячейки. Чтобы пары исходного вещества и продукты его разложения не оседали на шлангах и турбине насоса (после ячейки), на выходе второго патрубка ячейки стоит фильтр. Колба и ячейка имеют отдельные подогреватели и завернуты в теплозащиту (базальтовый мат и стеклоткань сверху), чтобы была возможность прогревать всю систему при минимальной мощности и во избежание нагревания находящихся рядом блоков спектрометра и рупоров. Подогреватели представляют собой обмотки высокоомного провода вокруг ячейки и колбы. Для контроля температуры использованы пять прецизионных датчиков температуры Pt 100. Три из них крепятся на аналитическую ячейку (у торцов и посередине), один – на притертое соединение системы напуска и аналитической ячейки, один – на колбу с веществом. Сигналы с датчиков поступают через интерфейс USB в компьютер, после обработки специально написанной программой результаты выводятся на экран монитора в режиме реального времени (рис. 2), что позволяет отслеживать изменение температуры при нагреве реакционного объема.

Были проведены исследования кинетики термического разложения энергетических материалов на примере нитрата аммония. Проводились измерения динамики линий поглощения NH_3 , HNO_3 и N_2O (рис. 3–5).

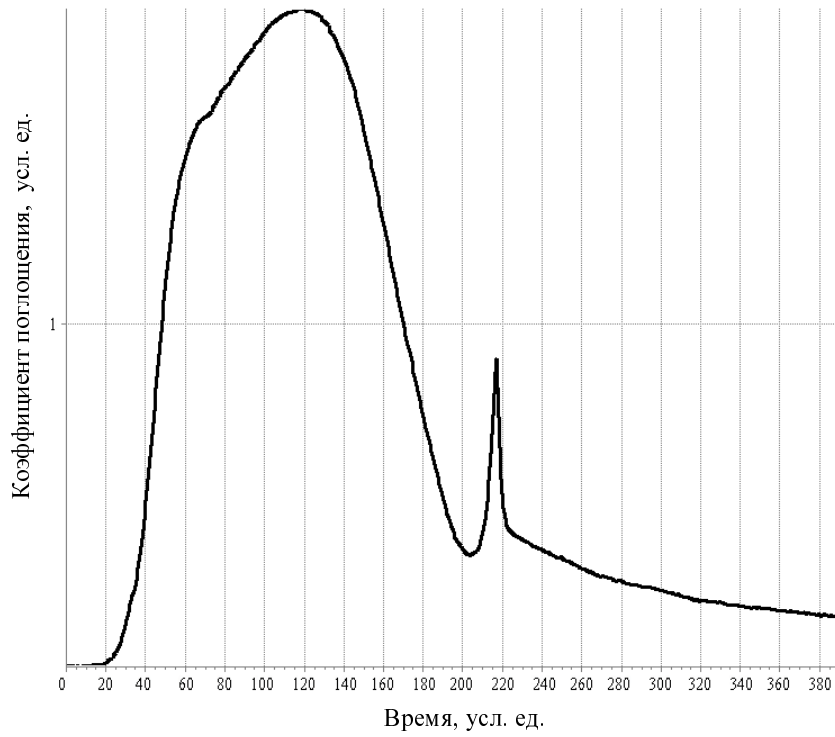


Рис. 3. Запись зависимости интенсивности линии поглощения NH_3 (140140,807 МГц) от времени

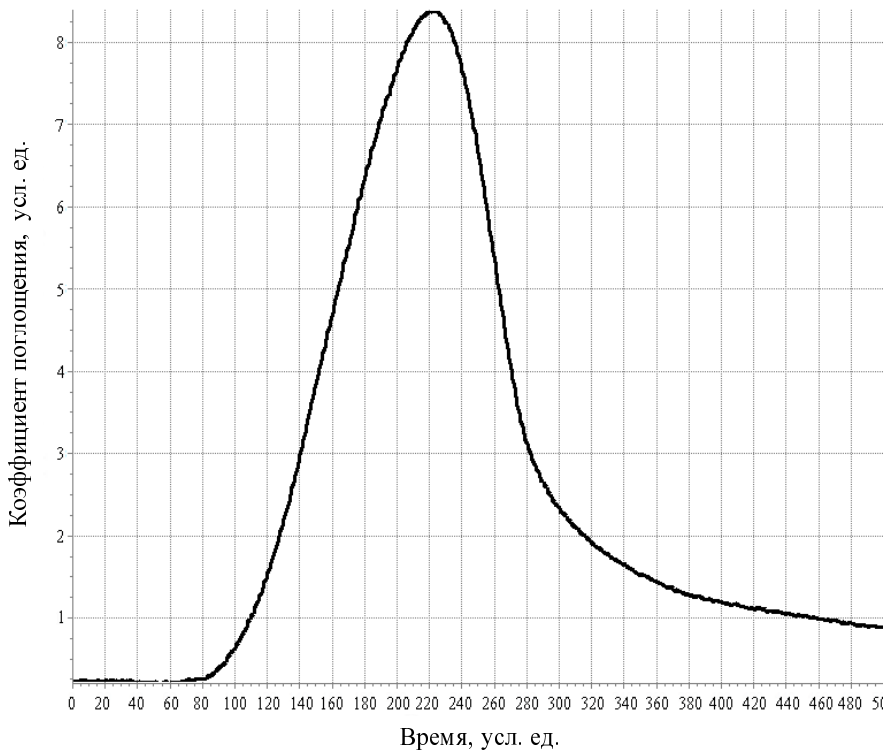


Рис. 4. Запись зависимости интенсивности линии поглощения HNO_3 (156523,189 МГц) от времени

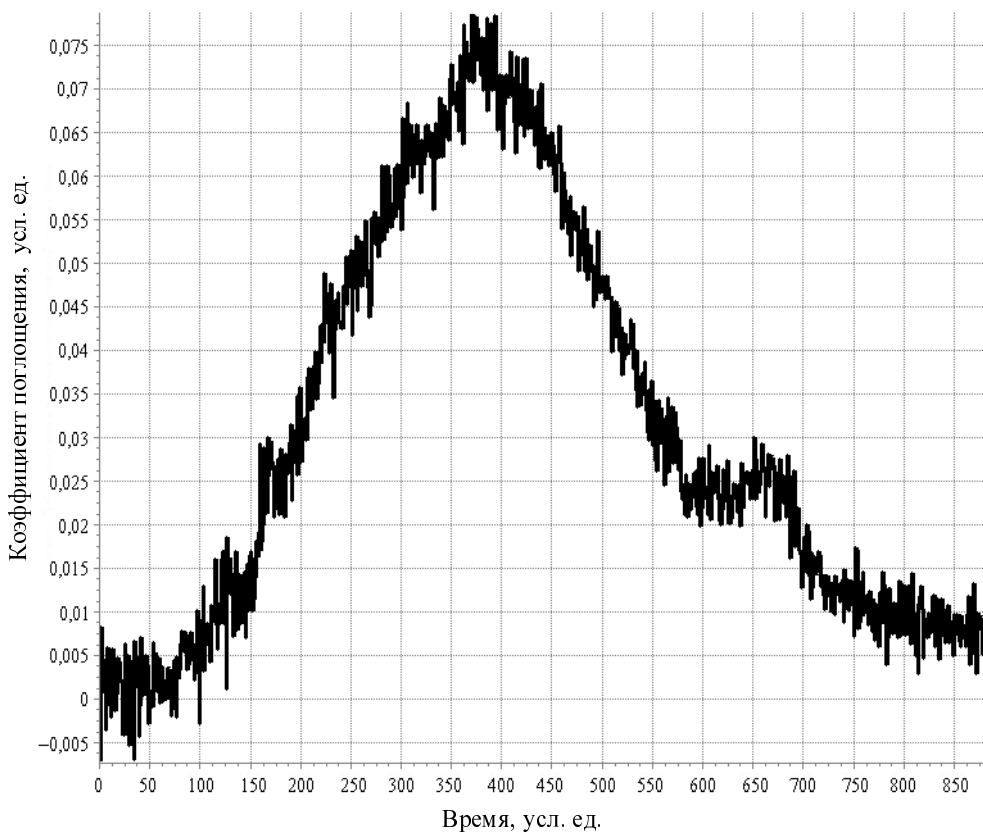


Рис. 5. Запись зависимости интенсивности линии поглощения N_2O (150735,046 МГц) от времени

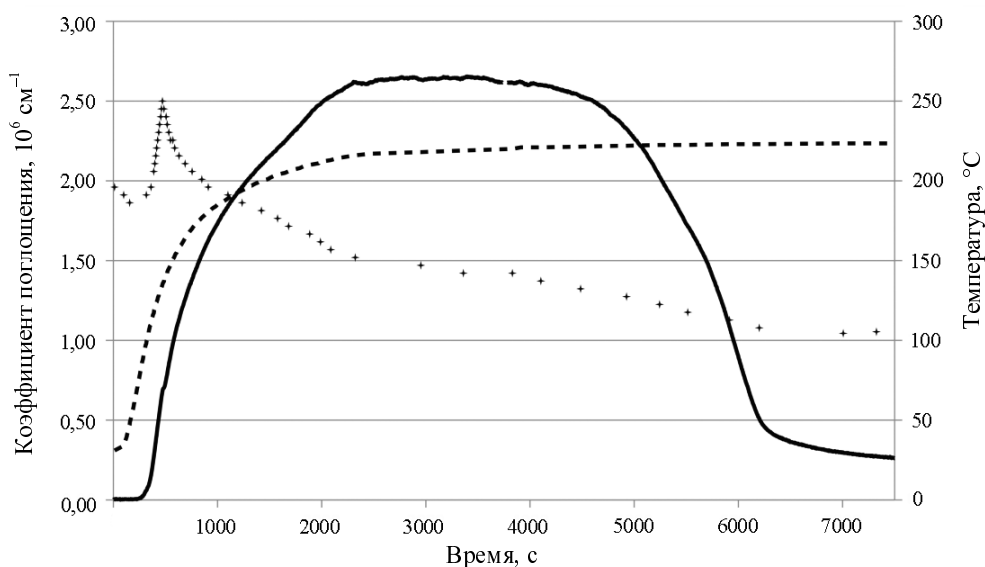


Рис. 6. Зависимость интенсивности линий поглощения продуктов реакции от температуры:
 — коэффициент поглощения, --- температура реакционного объема, + — давление в измерительном объеме

С использованием уравнения Аррениуса $v = k_0 \exp\left(-\frac{E_0}{kT}\right) c^\alpha$, где E_0 – энергия активации реакции; k_0 – константа скорости реакции; α – коэффициент, называемый порядком реакции по данному веществу; k – постоянная Больцмана, описывающая скорость реакции, были рассчитаны порядки протекающих в ходе термолиза нитрата аммония реакций, составившие 2,2 для NH_3 ; 1,9 для HNO_3 ; 1,8 для N_2O . Были также проведены измерения зависимости интенсивностей линий поглощения при постепенном росте температуры (рис. 6). Из них можно определить температуру начала реакции. Так, например, для HNO_3 она оказалась около 130°C .

Заключение

Таким образом, применение терагерцевой спектроскопии высокого разрешения позволяет значительно повысить селективность, чувствительность, достоверность и экспрессность анализа газообразных продуктов разложения энергетических материалов с целью построения более качественных и достоверных кинетических моделей этих процессов.

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки РФ (грант № 14.607.21.0100).

Список литературы

1. Loebbecke S., Kaiser M., Chiganova G. A. *Energetic Materials* / Ed. by Teipel U. Wiley, Weinheim, 2005. P. 367.
2. Таланова А. Н., Мирошниченко Н. А., Балякина О. М и др. Комплексный дифференциально-термический, термогравиметрический, инфракрасный спектрометрический анализ для исследования совместимости ВВ с конструкционными материалами // Сб. мат. XV Харитоновских чтений. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2013.
3. Lee J. S., Hsu C. K., Chang C. L. A study on the thermal decomposition behaviors of PETN, RDX, HNS and HMX // *Thermochimica Acta*. 2002. 392–393. P. 173.
4. Манелис Г. Б., Назин Г. Н., Рубцов Ю. И., Струнин В. А. Термическое разложение и горение взрывчатых веществ и порохов. М.: Наука, 1995.
5. Brill T. B., Congwer P. E., Williams G. K. Thermal Decomposition of Energetic Materials. 66. Kinetic Compensation Effects in HMX, RDX, and NTO // *J. Phys. Chem*. 1994. Vol. 98. P. 12242.
6. Шу Ю., Корсунский Б. Л., Назин Г. М. Механизм термического разложения вторичных нитраминов // *Успехи химии*. 2004. Т. 73. Вып. 3. С. 320.
7. Akinade K. A., Campbell R. M., Compton D. A. C. The use of a simultaneous TGA/DSC/FT-IR system as a problem-solving tool // *J. Mater. Sci*. 1994. Vol. 29. P. 3802.
8. Zhu B., Chen Y., Deng K. et al. Terahertz Science and Technology and Applications // *PIERS Proc.*, Beijing, 2009. P. 1166.

9. Девярых Г. Г., Сенников П. Г. Спектроскопическое определение и изучение молекулярного состояния примеси воды в высокочистых летучих неорганических веществах // Успехи химии. 1995. Т. 64. Вып. 9. С. 872.

10. Vaks V., Domracheva E., Sobakinskaya E., Chernyaeva M. Sub-THz Spectroscopy for Security Related Gas Detection, Chapter 24 in book: Terahertz and Mid Infrared Radiation: Detection of Explosives and CBRN (Using Terahertz) / Ed. by M. F. Pereira and O. Shulika, NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics, Springer Science+Business Media Dordrecht, 2014.

11. Yablokov A. A., Anfertev V. A., Revin L. S. et al. Two-Frequency THz Spectroscopy for Analytical and Dynamical Research // IEEE Transaction on Terahertz Science and Technology. 2015. Vol. 5 (5). P. 845–851.

Investigation of the Kinetics of Thermal Decomposition of Energetic Materials Using High-resolution Terahertz Frequency Spectroscopy

**V. L. Vaks, E. G. Domracheva, G. A. Soyegova, A. A. Jablovkov, I. A. Lukyanenko,
Ju. V. Sheikov**

Nowadays studying the kinetics of chemical reactions is very important for solving problems of detonation physics, growth of hi-tech structures, etc. With using the high precise THz spectroscopy the kinetics of thermal decomposing the high energy materials (by the example of ammonium nitrate) and detecting the decomposition products both at room temperature and at heating in linear and isothermic modes as well as staging of decomposition processes have been studied. The absorption lines of ammonium, nitrous oxide and nitric acid have been registered. The yield time and yield temperature of the decomposition products as well as the number of reaction have been determined. The prospective of using the high precise THz spectroscopy for studying the kinetics of thermal decomposing the high energy substances, determining the process staging and developing the reliable kinetic models has been shown.

УДК 541.427.6

Оценка констант радиолиза октогена и ТАТБ при нейтронном облучении

А. М. Злобин, Т. Е. Кирсанова,
Д. А. Кашеев, С. Э. Гребенникова,
Ю. В. Шейков, С. А. Вахмистров,
Н. Я. Сысоев, А. А. Девяткин,
А. М. Пичугин, К. В. Лизунов

Представлены результаты экспериментальных исследований, проведенных с использованием манометрического метода на базе измерительно-вычислительного комплекса «Вулкан-2000», выхода газообразных продуктов разложения из необлученных и облученных нейтронами образцов октогена и ТАТБ. Эксперименты по облучению образцов взрывчатых веществ (ВВ) нейтронами выполнялись при четырех последовательных статических пусках реактора БИГР, обеспечивших суммарную поглощенную дозу 0,84 Мрад. Получены оценки констант радиационного разложения k_r , а также характерных времен выхода газообразных продуктов разложения.

Введение

При воздействии различных видов ионизирующих излучений (ИИ) на ВВ практический интерес представляют экспериментальные данные, связанные с образованием газообразных продуктов разложения и их выделением из облученных образцов ВВ. Эти продукты, возникающие в объеме конденсированных ВВ при их термическом и радиационном разложении, оказывают существенное влияние на механические, термодинамические и газодинамические характеристики ВВ [1–3]. Образование газов приводит к нарастанию внутреннего давления, образованию пор, уменьшению плотности (увеличению объема), изменению физико-химических характеристик ВВ, снижению скорости детонации и т. д. Изучение газовой фазы дает важную информацию о кинетических процессах в ВВ, вызываемых ионизирующими излучениями.

В рамках проводимых исследований воздействия нейтронного излучения $\sim 6,08 \cdot 10^{14}$ н/см² с $E_n > 0,1$ МэВ и сопутствующего гамма-излучения на ВВ октоген и ТАТБ получены экспериментальные данные, связанные с образованием газообразных продуктов разложения и их выделением из облученных и необлученных образцов ВВ. Суммарная поглощенная доза в образцах ВВ составила ~ 2 кал/г ($\sim 0,84$ Мрад). С использованием манометрического метода на базе измерительно-вычислительного комплекса «Вулкан-2000» исследованы экспериментальные зависимости

объема выделившихся газов от времени выдержки образцов ВВ в термостате. Кинетические кривые газовыделения содержат важную информацию о таких кинетических параметрах, как константа скорости реакции, энергия активации термического разложения, константа радиационного разложения ВВ, доля газовой фазы в продуктах радиолиза, характерные времена выхода газов и др.

Представлены результаты анализа кинетических процессов газовыделения, полученные на основе решения кинетического уравнения с использованием релаксационной модели (τ -модель), учитывающей механизмы генерации и выхода газообразных продуктов разложения из образцов ВВ.

Проведена оценка таких кинетических параметров, как константа радиолиза, характерные времена выхода газов из облученных и необлученных образцов и др., а также интерпретирован характер экспериментальных зависимостей выхода газов от времени эксперимента.

Экспериментальные данные для октогена, ТАТЬ

Химическую стойкость ВВ определяли манометрическим методом с использованием измерительно-вычислительного комплекса «Вулкан-2000». Масса ВВ 0,5 г. Время проведения опытов – 5 ч.

Химическую стойкость ВВ оценивали по константе скорости реакции и энергии активации термического разложения, рассчитанным по экспериментальным данным об изменении объема выделившихся газов в результате выдержки при повышенной температуре. Результаты представлены в табл. 1.

Таблица 1

Кинетические параметры (энергия активации и константа скорости реакции) термического разложения ТАТЬ, октоген

Взрывчатое вещество		Температура, °С	$k_T, \text{с}^{-1}$	$E, \text{кал/моль}$
Октоген	Исходный	190	$1,2 \cdot 10^{-7}$	43600
	Облученный		$1,6 \cdot 10^{-7}$	43300
ТАТЬ	Исходный	225	$2,4 \cdot 10^{-7}$	46200
	Облученный		$3,1 \cdot 10^{-7}$	46000

На рис. 1 и 2 представлены результаты измерений объема выделившихся газов от времени для необлученных и облученных образцов октогена и ТАТЬ, соответственно.

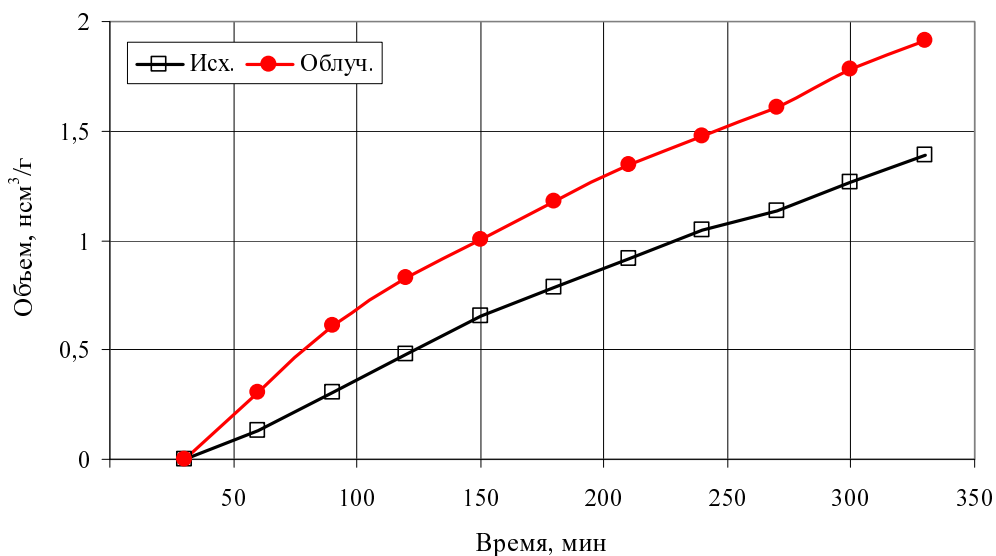


Рис. 1. Зависимость объема выделившихся газов от времени проведения эксперимента для октогена

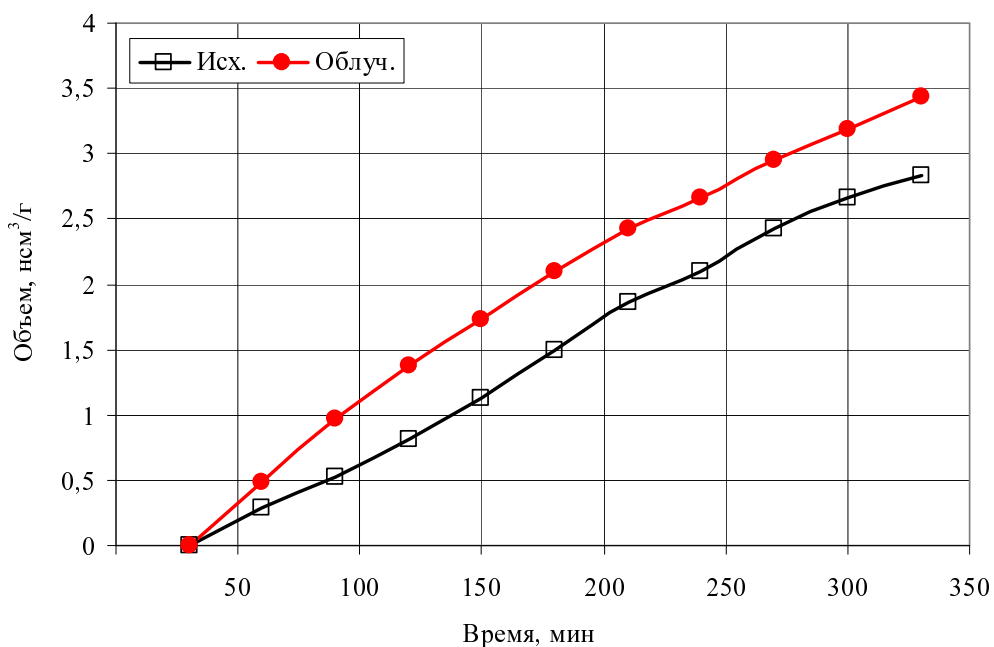


Рис. 2. Зависимость объема выделившихся газов от времени проведения эксперимента ВВ ТАТБ

Как уже указывалось, газообразные продукты, выделяющиеся из облученных образцов при их выдержке в термостате, содержат не только газы, связанные с термическим разложением ВВ при данной температуре, но и образовавшиеся при разложении ВВ под воздействием гамма-нейтронного излучения (в результате радиолитиза). Поэтому и зависимость газовой выделенности, обусловленной указанными процессами, от времени наблюдения должна отличаться.

Результаты анализа экспериментальных данных для необлученных образцов октогена и ТАТБ

Анализ кинетики газовой выделенности из необлученных образцов может быть проведен на основе кинетического уравнения

$$\frac{dm_g}{dt} = \left(\frac{dm_g}{dt} \right)_T + \left(\frac{dm_g}{dt} \right)_Z, \quad (1)$$

где m_g – масса газообразных продуктов в образце, первое слагаемое справа описывает процесс термического разложения, увеличивающий массу газа в объеме; второе – выход газов из объема образца.

Решение кинетического уравнения (1) для удельного объема газов $V_T(t)$, вышедших из необлученного образца, в приближении времени релаксации можно представить в следующем виде:

$$V_T(t) = V_\infty \left[1 - \frac{\gamma_T}{\gamma_T - 1} \exp\left(-\frac{t}{\tau_T}\right) + \frac{1}{\gamma_T - 1} \exp(-k_T t) \right], \quad (2)$$

где V_∞ – объем газообразных продуктов, выделяющийся при полном термическом разложении ВВ (для октогена и ТАТБ $V_\infty = 620 \pm 10 \text{ см}^3/\text{г}$); $\gamma_T \equiv k_T \tau_T$, где k_T – константа скорости термического разложения; τ_T – характерное время выхода газов, обусловленных термическим разложением при данной температуре. Время выхода газов τ_T играет роль феноменологического параметра, оценка которого может быть получена с использованием экспериментальных кривых газовой выделенности для необлученных образцов ВВ, приведенных на рис. 1 и 2.

Легко убедиться в том, что функция (2) правильно описывает предельные случаи: при $t = 0$ $V_T(0) = 0$; $\lim_{t \rightarrow \infty} V_T(t) = V_\infty$. Кроме того, при $\gamma_T \rightarrow \infty$ $V_T(t) \rightarrow 0$ – это означает, что при очень больших характерных временах выхода газов τ_T все газообразные продукты термического разложения находятся в объеме ВВ и при реальных временах наблюдения объем вышедших газов ничтожно мал.

Функция (2) имеет точку перегиба при $t = t^*$, где

$$t^* = -\frac{\tau_T}{1 - \gamma_T} \ln \gamma_T. \quad (3)$$

В условиях наших экспериментов (температура термостата $T = 190$ и 225°C , времена выдержки образцов в термостате не превышают 300 мин) выполняются неравенства $k_T t \ll 1$ и $\gamma_T \ll 1$. Это дает возможность с помощью выражения (2) получить оценку параметра τ_T , основанную на экспериментальных значениях $V_{T,\text{exp}}(t)$:

$$\tau_T \approx t - \frac{V_{T,\text{exp}}(t)}{60 V_\infty k_T}. \quad (4)$$

Полагая, например, для октогена $t = 100$ мин, с использованием экспериментальных результатов на рис. 1 получим $V_{T, \text{exp}}(100) \approx 0,36 \text{ см}^3/\text{г}$, и оценка (4) дает: $\tau_T \approx 20$ мин. Можно убедиться в том, что близкая оценка τ_T получается и в том случае, если использовать другое время выдержки из рассматриваемого диапазона.

Знание двух параметров k_T и τ_T позволяет получить с помощью формулы (2) расчетные значения объема вышедших газов из необлученного октогена $V_{T, th}(t)$ во всем диапазоне времен наблюдения. В табл. 2 приведены результаты сравнения экспериментальных значений объема вышедших газов из необлученных образцов октогена $V_{T, \text{exp}}(t)$ с расчетными величинами $V_{T, th}(t)$. Из таблицы следует, что рассмотренная кинетическая модель выхода газообразных продуктов термического разложения из необлученных образцов октогена при температуре термоста-та 190°C дает неплохое согласие с экспериментом при значении константы скорости реакции $k_T = 1,2 \cdot 10^{-7} \text{ с}^{-1}$ и характерном времени выхода газов $\tau_T = 20$ мин.

Таблица 2

Экспериментальные $V_{T, \text{exp}}(t)$ и расчетные $V_{T, th}(t)$ значения объема вышедших газов из необлученных образцов октогена при термическом разложении ($k_T = 1,2 \cdot 10^{-7} \text{ с}^{-1}$, $\tau_T = 20$ мин)

Время, мин	27	50	100	150	250	300
$V_{T, \text{exp}}(t)$	0,02	0,08	0,36	0,64	1,08	1,25
$V_{T, th}(t)$	0,05	0,13	0,36	0,58	1,03	1,25

Заметное различие результатов, наблюдаемое при малых временах выдержки ($t < 100$ мин), может быть объяснено погрешностью измерения малых объемов газообразных продуктов разложения.

Используя найденное значение характерного времени выхода газов τ_T у октогена и выражение (3), можно получить оценку положения точки перегиба

$$t^* \approx - \frac{20}{1 - 1,44 \cdot 10^{-4}} \ln(1,44 \cdot 10^{-4}) \approx 180 \text{ мин}, \quad (5)$$

так как $\gamma_T = 1,2 \cdot 10^{-7} \cdot 20 \cdot 60 = 1,44 \cdot 10^{-4}$.

Полученная оценка величины t^* не противоречит виду кривой для исходного октогена на рис. 1. Смена знака второй производной на графике выражена слабо, так как в наших условиях выполняется неравенство $k_T t \ll 1$.

Аналогично можно сделать оценку характерного времени τ_T выхода газов для необлученных образцов ТАТБ, используя экспериментальные результаты, представленные на рис. 2. Произведенная оценка τ_T дает величину, близкую полученной выше величине для октогена. В табл. 3 представлено сравнение для ТАТБ расчетных величин объема вышедших газов $V_{T, th}(t)$, полу-

ченных с использованием формулы (2), с экспериментальными значениями $V_{T,exp}(t)$ для различных времен выдержки (значения параметров: $k_T = 2,4 \cdot 10^{-7} \text{ с}^{-1}$, $\tau_T = 20 \text{ мин}$).

Таблица 3

Экспериментальные $V_{T,exp}(t)$ и расчетные $V_{T,th}(t)$ значения объема вышедших газов из необлученных образцов ТАТБ при термическом разложении ($k_T = 2,4 \cdot 10^{-7} \text{ с}^{-1}$, $\tau_T = 20 \text{ мин}$)

Время, мин	27	50	100	150	250	300
$V_{T,exp}(t)$	0,02	0,23	0,65	1,15	2,23	2,70
$V_{T,th}(t)$	0,1	0,28	0,70	1,15	2,04	2,50

Из табл. 3 следует, что в диапазоне времен выдержки 100–300 мин расхождение экспериментального $V_{T,exp}(t)$ и расчетного значений $V_{T,th}(t)$ не более 8 %. Как было отмечено выше, заметное различие результатов при малых временах выдержки ($t < 100 \text{ мин}$) можно объяснить большой погрешностью измерения малых объемов газообразных продуктов разложения.

Точка перегиба кривой $V_{T,exp}(t)$ для ТАТБ, согласно формуле (3), при принятых выше параметрах k_T и τ_T (параметр $\gamma_T \approx 0,29 \cdot 10^{-3}$) имеет место при времени выдержки: $t^* = -\frac{\tau_T}{1 - \gamma_T} \ln \gamma_T \approx -\frac{20}{1 - 0,29 \cdot 10^{-3}} \ln 0,29 \cdot 10^{-3} \approx 163 \text{ мин}$.

Оценка констант радиолита для октогена и ТАТБ по экспериментальным данным

Константа радиолита для октогена

Зависимость от времени объема выделившегося из образца газа, образовавшегося при радиационном разложении ВВ, в принятой модели может быть записана в виде

$$\Delta V_D(t) = V_\infty (\eta_r k_r D - \delta_z) \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_r}\right) \right), \quad (6)$$

где k_r – константа радиолита; D – поглощенная доза (рад/г); η_r – доля газообразных продуктов в продуктах радиационного разложения ВВ; δ_z – доля «заклиненных» газов при температуре выдержки; τ_r – время выхода радиолитических газов при температуре выдержки.

Время выхода τ_r может быть оценено из (6):

$$\tau_r = - \frac{t}{\ln \left[1 - \frac{\Delta V_D(t)}{V_\infty (\eta_r k_r D - \delta_z)} \right]}. \quad (7)$$

Для нахождения τ_r необходимо знать, прежде всего, константу радиолитического разложения октогена. Оценку k_r можно сделать, используя полученные экспериментальные данные при временах, больших по сравнению с τ_r , когда радиолитические газы вышли из образца. Из выражения (6), если предположить, что $\exp(-t/\tau) \ll 1$ и ею можно пренебречь, приближенно получим

$$k_r \approx \frac{\Delta V_{D, \text{exp}} + \delta_z V_\infty}{V_\infty \eta_r D}, \quad (8)$$

где $\Delta V_{D, \text{exp}}$ – экспериментальное значение объема выделившихся радиолитических газов при временах выдержки $t > \tau_r$.

Полагая для наших условий $D = 8,38 \cdot 10^5$ рад, максимальное время выдержки $t = 300$ мин, $\Delta V_{D, \text{exp}}(t) = 0,54$ см³/г (в соответствии с рис. 1) и считая для простоты $\delta_z = 0$, получим

$$k_r \approx \frac{0,54}{\eta_r \cdot 620 \cdot 8,38 \cdot 10^5} \approx \eta_r^{-1} 1,04 \cdot 10^{-9} \text{ рад}^{-1}. \quad (9)$$

Если доля газообразных продуктов радиационного разложения при радиолитическом разложении октогена меньше единицы, то в соответствии с (9) величина k_r будет несколько больше. При интерпретации наших экспериментов по облучению образцов ВВ высокоэнергетическими электронами на ускорителе ЛУ-50 для константы радиолитического разложения октогена была получена оценка: $k_r \approx 1,48 \cdot 10^{-9}$ 1/рад [2], что примерно на 40 % больше величины (9).

Используя полученную величину k_r , сделаем оценку времени выхода радиолитических газов τ_r из образца октогена с помощью выражения (7), выбрав $t = 150$ мин (середину диапазона времени выдержки)

$$\tau_r = - \frac{150}{\ln \left[1 - \frac{0,37}{620 \cdot 1,04 \cdot 10^{-9} \cdot 8,38 \cdot 10^5} \right]} \approx 130 \text{ мин}. \quad (10)$$

Можно показать, что вариация величины t в выражении (7) в рассматриваемом диапазоне выдержки не сильно изменяет это значение.

Отметим, во-первых, что полученные значения характерных времен выхода газов, обусловленных термическим разложением и радиолитическим разложением октогена, существенно различаются (соответственно, $\tau_T = 20$ мин и $\tau_r = 130$ мин). Во-вторых, величина τ_r (10) подтверждает справедливость

допущения, использованного при оценке k_r : $\exp\left(-\frac{t}{\tau_r}\right) \Big|_{t=300} = \exp\left(-\frac{300}{130}\right) \approx 0,099 \ll 1$.

ОЦЕНКА КОНСТАНТ РАДИОЛИЗА ОКТОГЕНА И ТАТБ ПРИ НЕЙТРОННОМ ОБЛУЧЕНИИ

В табл. 4 приведены результаты экспериментальных значений объема выделившихся газов от времени $V_{D,T\text{exp}}(t)$ для облученного октогена (см. рис. 1) и расчетных величин $V_{D,T\text{th}}(t)$, где

$$V_{D,T\text{th}}(t) = V_{T,\text{exp}}(t) + \Delta V_{D,\text{th}}(t), \quad (11)$$

где $\Delta V_{D,\text{th}}(t)$ – объем радиолитических газов, рассчитанный по формуле (6) с параметрами $k_r = 1,04 \cdot 10^{-9} \text{ рад}^{-1}$, $\tau_r = 130 \text{ мин}$, $\delta_z = 0$.

Таблица 4

Экспериментальные $V_{D,T\text{exp}}(t)$ и расчетные значения $V_{D,T\text{th}}(t)$ объема вышедших газов для облученных образцов октогена

Время, мин	27	50	100	150	250	300
$V_{D,T\text{exp}}(t)$, см ³ /г	0,02	0,20	0,67	1,01	1,53	1,79
$V_{D,T\text{th}}(t)$, см ³ /г	0,12	0,25	0,66	1,01	1,54	1,74

Видно, что рассмотренная модель с принятыми оценками двух параметров k_r и τ_r во всем рассмотренном диапазоне времен удовлетворительно согласуется с экспериментальными результатами, полученными для облученного октогена при температуре термостата 190 °С (за исключением области малых времен, где велика погрешность измерения малых объемов газообразных продуктов разложения).

Константа радиолита для ТАТБ

Оценку константы радиолита ТАТБ можно сделать так же, как и для октогена, используя экспериментальные данные для объема вышедшего газа $\Delta V_D(t)$ при временах, больших по сравнению со временем выхода радиолитических газов τ_r . При максимальных временах выдержки в наших экспериментах ($t = 300 \text{ мин}$), согласно рис. 2, $\Delta V_{D,\text{exp}} \approx 0,5 \text{ см}^3/\text{г}$, и, считая для простоты $\delta_z = 0$, получим, используя (8):

$$k_r \approx \frac{\Delta V_{D,\text{exp}}}{V_\infty \eta_r D} \approx \frac{0.5}{\eta_r \cdot 620 \cdot 8,38 \cdot 10^5} \approx \eta_r^{-1} 0,96 \cdot 10^{-9} \text{ рад}^{-1}. \quad (12)$$

Эта величина близка к оценке k_r для октогена, приведенной выше (ниже ее на ~8 %). Следует иметь в виду, что по некоторым данным доли газообразных продуктов η_r у октогена и ТАТБ могут заметно различаться. Это может привести к увеличению полученного значения k_r для ТАТБ.

Список литературы

1. Рябых С. М. Закономерности образования и накопления радиолитического азота, удерживаемого кристаллической решеткой азидов тяжелых металлов // Химическая физика. 1990. Т. 9, № 2. С. 191.

2. Герман В. Н., Завьялов Н. В., Злобин А. М. и др. Исследование воздействия импульсного электронного облучения на взрывчатый состав на основе октогена // ВАНТ. Сер. Теоретическая и прикладная физика. 1992. Вып. 3. С. 19–23.

3. Герман В. Н., Завьялов Н. В., Злобин А. М. и др. Воздействие электронного облучения на взрывчатое вещество ТАТБ // Там же. 1995. Вып. 3/1. С. 49–53.

Estimation of Constants of Radiolysis of Plasticized HMX and TATB under Neutron Irradiation

**A. M. Zlobin, T. E. Kirsanova, D. A. Kashcheev, S. E. Grebennikova, Yu. V. Sheikov,
S. A. Vakhmistrov, N. Ya. Sysoev, A. A. Devyatkin, A. M. Pichugin, K. V. Lizunov**

Presents the experimental results of release of gaseous decomposition products out of the samples of HMX and TATB. These samples were unirradiated and irradiated with neutrons. The experimental studies were fulfilled by using a manometric technique on the basis of a measuring and computing complex called «Vulkan-2000», The experiments for neutron irradiation of samples of explosives (HE) were carried out during four sequential static start-ups of the BTGR reactor. This provided a cumulative absorbed dose of 0,84 Mrad. Radiation decomposition constants k_r as well as times of release of gaseous decomposition products were estimated.

УДК 541.427.6

Влияние размерных эффектов и структуры гексогена на его реакционную способность

П. С. Белухина, В. А. Бурнашов,
С. А. Вахмистров, С. Э. Гребенникова,
Н. А. Мирошниченко, Ю. В. Шейков

Приведены результаты расчетно-экспериментальной работы по оценке влияния размерных эффектов частиц гексогена на его реакционную способность при температурном воздействии. Проведена оценка реакционной способности гексогена, полученного методом термовакуумной перекристаллизации (гексоген-ТТ), который приводит к существенному изменению характерных размеров, как внутренней структуры, так и самих кристаллов, и исходного гексогена серийного производства. Для сравнительной оценки реакционной способности рассматривали кинетические параметры процесса термического разложения ЭМ, полученные в условиях динамического нагрева. С использованием дифференциально-сканирующей калориметрии построены кинетические модели (КМ) процесса термораспада гексогена и гексо-

гена-ТТ, в которых учитываются процесс плавления ЭМ и каталитическое влияние продуктов его разложения. Определены кинетические параметры модели. Представлены результаты верификации построенных КМ. Показано, что структурные изменения в гексогене-ТТ – уменьшение размера кристаллов, а также увеличение внутрикристаллических дефектов – приводят к менее выраженному автокатализу относительно исходного образца. Показан способ нивелирования различий в кинетике термораспада исследованных ЭМ, путем введения пластификатора.

Введение

Известно, что реакционная способность взрывчатых веществ (ВВ) связана с процессом формирования «горячих точек», на который оказывают влияние размерные эффекты. Различают два типа размерных эффектов: внутренний и внешний. Внутренний связан с электронными и структурными свойствами частиц, определяющими их химическую активность, энергию связи и кристаллографическую структуру [1]. Внешний размерный эффект отражает зависимость реакции частицы на внешнее действие сил от ее размера. Нахождение способов регулирования этими эффектами позволяет добиваться определенных успехов в разработке новых типов ВВ с заданными свойствами. В последние годы вновь возрос интерес к ультрадисперсным ВВ для получения ВВ с малой критической толщиной детонации, разработки миниатюрных взрывных устройств различного назначения [2]. В работах [3, 4] показано, что методом термовакуумной возгонки возможно получать сублимированные ВВ с требуемой структурой и детонационной способностью, регулируя размеры и количество внутренних дефектов, являющихся потенциальными центрами

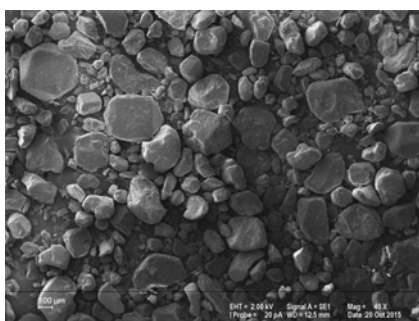
развития взрывчатого превращения ВВ. Однако, влияние размерных эффектов на реакционную способность ультрадисперсных ВВ остается недостаточно изученным.

В настоящей работе приведены некоторые новые экспериментальные факты, показывающие, что термовакуумная возгонка ВВ приводит к изменению кинетических параметров его термического разложения относительно исходного образца. Одним из немногих методов, с помощью которых можно почувствовать эту разницу, является метод дифференциально-сканирующей микрокалориметрии.

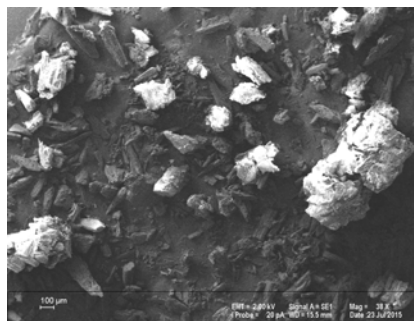
Объекты исследования, техника проведения эксперимента и обработки данных

Исследования проводили на гексогене серийного изготовления с плотностью кристаллов $1,797 \text{ г/см}^3$ и гексогене, полученном методом термовакуумного осаждения (гексоген ТТ), с плотностью $1,789 \text{ г/см}^3$, определенной пикнометрическим методом. Удельная поверхность исследованных образцов ВВ составляла 750 и $1700 \text{ см}^2/\text{г}$ соответственно.

На рис. 1 представлены изображения исследованных образцов ВВ, полученные с использованием сканирующего электронного микроскопа.



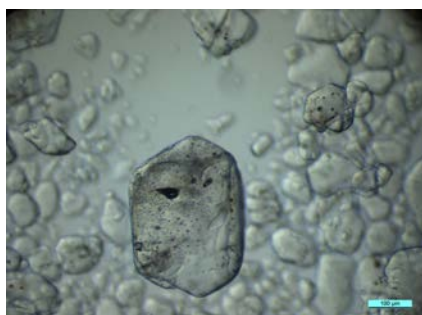
а



б

Рис. 1. Изображения гексогена: а – гексоген серийного изготовления, б – гексоген ТТ

На рис. 2 представлены изображения образцов ВВ в иммерсионной жидкости, полученные с использованием стереомикроскопа.



а



б

Рис. 2. Изображения гексогена в иммерсионной жидкости: а – гексоген серийного изготовления, б – гексоген ТТ

Из рис. 1 и 2 наглядно видно, что размер, форма, а также количество внутренних дефектов в кристаллах гексогена серийного изготовления и гексогена ТТ заметно разнятся. Для гексогена серийного изготовления характерны кристаллы округлой формы без выраженных границ раздела, в то время как гексоген ТТ имеет вытянутые кристаллы с развитой поверхностью. Количество внутренних пор, не заполняемых иммерсионной жидкостью, в случае гексогена ТТ многократно больше, а их размеры – напротив, меньше, чем в гексогене серийного изготовления.

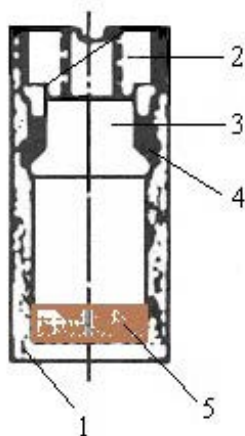


Рис. 3. Схема реакционной ячейки микрокалориметра типа Тиана-Кальве: 1 – безопасный тигель; 2 – стальная пробка на резьбе; 3 – стальная заглушка; 4 – никелевое герметизирующее кольцо; 5 – ВВ

Анализ кинетических параметров термического разложения ВВ проводили на основании экспериментальных данных, полученных методом дифференциально-сканирующей калориметрии на микрокалориметре типа Тиана-Кальве. ВВ подвергали нагреву в стальной калориметрической реакционной ячейке (рис. 3) при скоростях 1, 3 и 5 °С/мин. Масса ВВ в опытах не превышала 0,002 г. Заполнение ячейки ВВ составляло $\sim 0,014 \text{ г/см}^3$. Температурный интервал исследований: от 20 до 500 °С.

Для каждой из указанных выше скоростей нагрева проводили не менее двух экспериментов. По завершении эксперимента определяли дрейф инструментального сигнала (так называемая базовая линия), выполняя повторный нагрев (в том же режиме, что и эксперимент) остывшей до комнатной температуры реакционной ячейки (холостой эксперимент) [5, 6].

Дальнейшую обработку экспериментальных ДСК-кривых проводили с применением программного комплекса TSS [7]. Оценивали максимальный перегрев в исследуемом образце ВВ и реконструировали действительную скорость тепловыделения в образце (деконволюция данных). Выполнение данных процедур необходимо для учета искажения калориметрических измерений

реакции, которые обусловлены инерцией измерительной ячейки². В итоге получали наборы экспериментальных данных по тепловыделению при разложении ВВ в виде интегральных ($Q(t)$) и дифференциальных (dQ/dt) откликов, которые использовали для определения кинетических параметров процесса термораспада исследуемых образцов ВВ.

На рис. 4 (также см. цветную вкладку) представлены фрагменты типичных кинетических кривых разложения исследованных образцов гексогена при скорости нагрева 5 °С/мин после обработки.

¹ Искажение измерений калориметрической реакции пропорционально массовой теплоемкости образца и отношению между скоростью оттока тепла и скоростью его выделения.

² Инерция ячейки – аккумуляция части тепла реакции в испытываемом образце.

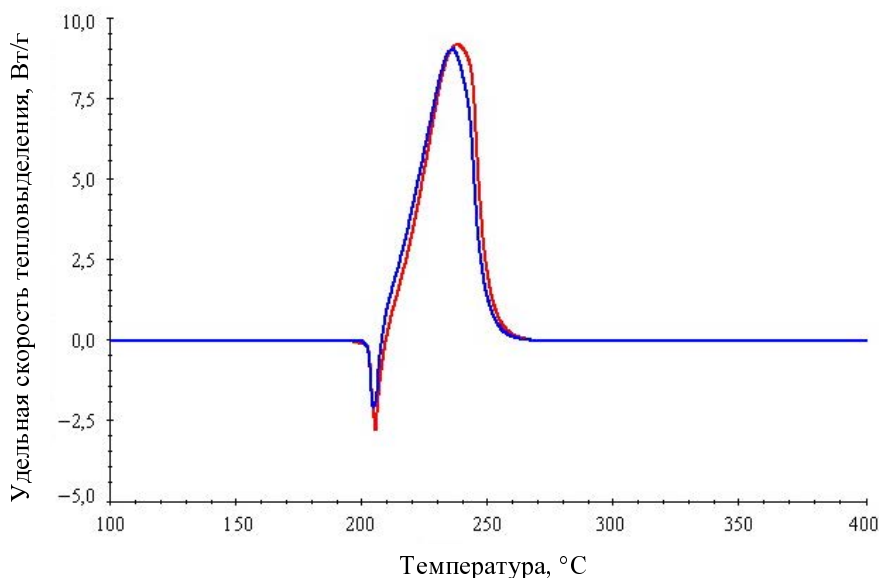


Рис. 4. Фрагменты ДСК-кривых термического разложения гексогена серийного изготовления и гексогена ТТ при скорости нагрева 5 °С/мин: — гексоген серийного изготовления, — гексоген ТТ

Построение формальных кинетических моделей разложения исследуемых взрывчатых веществ

Процесс разложения гексогена описывали моделью, принадлежащей к классу формальных.

При выборе модели термического разложения гексогена полагали, что ВВ разлагается будучи практически полностью в расплавленном состоянии. В этом случае скорость реакции термораспада превышает скорость этого процесса, происходящего в твердой фазе, о чем свидетельствует частичное наложение пиков плавления и разложения на ДСК-кривой (см. рис. 4).

Образующиеся газофазные продукты реакции разложения гексогена, растворяясь в конденсированной фазе, оказывают каталитическое влияние на разложение ВВ, обуславливая автокаталитический характер исследуемого процесса.

Жидкофазный процесс разложения гексогена представлен модифицированной моделью обобщенного автокатализа, скорость которой описывается уравнением

$$r = k_0 e^{-E/RT} (1 - \alpha)^{n1} (z(T) + \alpha^{n2}), \quad (1)$$

где α – степень превращения; k_0 – предэкспоненциальный множитель; E – энергия активации; $n1$, $n2$ – порядки реакций; T – температура; R – универсальная газовая постоянная; $z(T)$ – параметр автокатализа, зависящий от температуры

$$z(T) = z_0 \exp\left(-\frac{Ez}{RT}\right). \quad (2)$$

Данная модель дополняется уравнением, аппроксимирующим в соответствии с [8] скорость перехода ($r_{пл}$) ВВ из твердого состояния в расплав: $A_{ТВ} \rightarrow A_{Ж}$, в которой учитываются две принципиальные особенности плавления:

- температура системы твердое вещество–расплав остается постоянной, пока сосуществуют твердая и жидкая фазы;
- все тепло, как поступающее извне, так и выделяющееся при протекании химической реакции, расходуется на плавление вещества.

Таким образом, структура выбранной модели имеет вид



в которой суть катализа (с химической точки зрения) сводится к тому, что образующиеся в процессе разложения ВВ промежуточные комплексы обладают пониженной энергией связи в молекуле по сравнению с исходным веществом и $E_z < E$.

Система уравнений кинетической модели, описывающих скорость реакций, дополняется уравнением, которое связывает процесс с наблюдаемым откликом – выделением тепла:

$$\frac{dQ}{dt} = Q_{пл} r_{пл} + Q_p r, \quad (4)$$

где $Q_{пл}$ – удельное тепловыделение стадии плавления; $r_{пл}$ – скорость плавления; Q_p – удельное тепловыделение стадии разложения; r – скорость реакции разложения, описываемая уравнением (1).

Определение значений параметров для выбранной структуры модели проводили с применением ПО TSS. Наблюдение за описанием реакции термораспада выбранной кинетической моделью осуществляли по интегральным и дифференциальным откликам тепловыделения при термическом разложении гексогена серийного изготовления одновременно для трех скоростей нагрева. В результате параметрической идентификации модели химического процесса найдены значения параметров модели, при которых обеспечивается удовлетворительное описание экспериментальных данных (рис. 5 и 6,а)(см. также цветную вкладку).

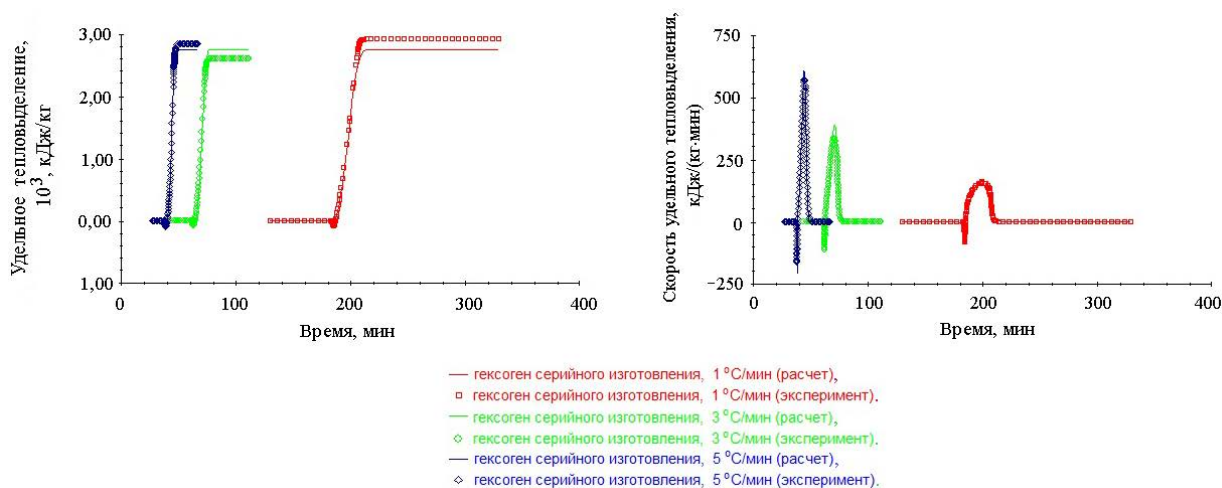
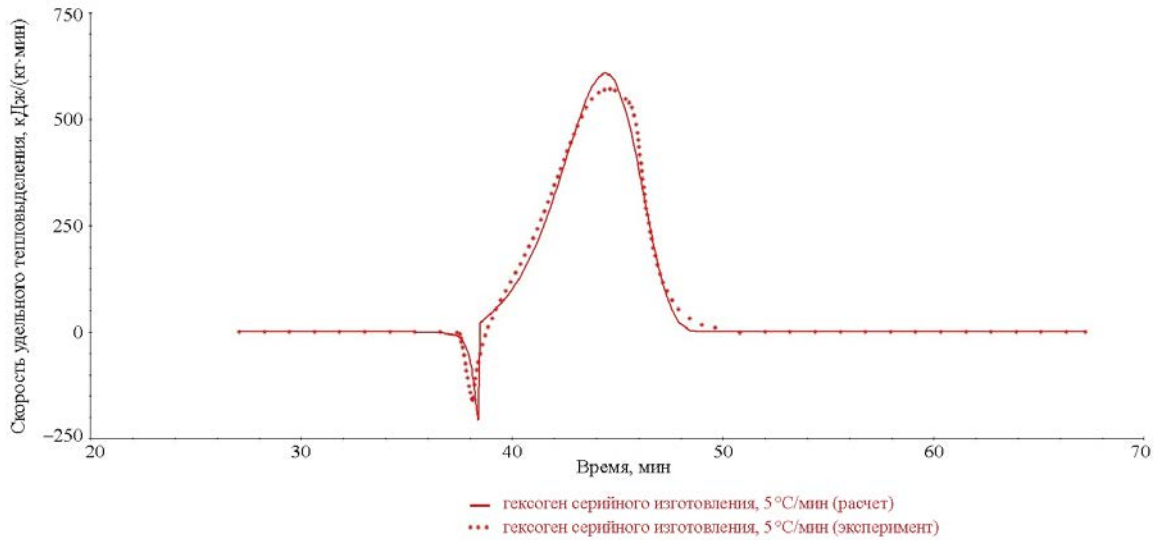
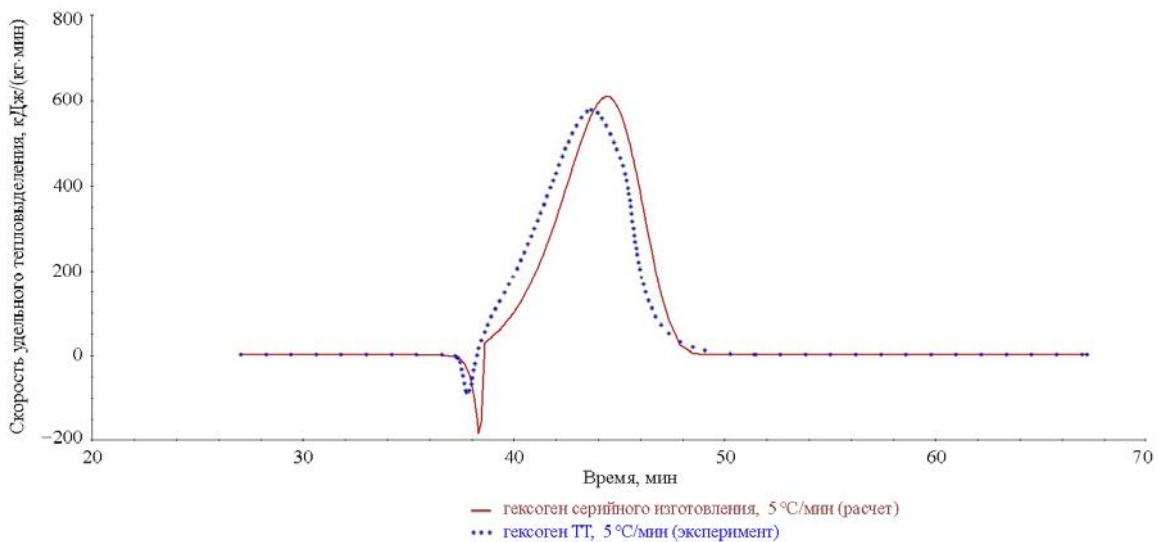


Рис. 5. Описание интегральных и дифференциальных откликов термического разложения гексогена серийного изготовления при скоростях нагрева от 1 до 5 °С/мин выбранной формальной моделью

Выбранная кинетическая модель со значениями параметров, обеспечивающих описание калориметрических откликов процесса термического разложения исходного гексогена, не позволяет добиться удовлетворительного описания ДСК откликов разложения гексогена ТТ (рис. 6,б) (см. также цветную вкладку).



а



б

Рис. 6. Описание ДСК откликов термического разложения гексогена серийного изготовления (а) и гексогена ТТ (б) выбранной формальной моделью

Полученный результат является свидетельством того, что после термовакuumного осаждения ВВ приобретает отличные от исходного ВВ физико-химические свойства, влияющие на кинетические параметры термораспада ВВ.

Проведение параметрической идентификации при наблюдении за описанием реакции термораспада по ДСК откликам гексогена ТТ (одновременно для трех скоростей нагрева) позволило добиться их удовлетворительного описания, не изменяя структуры выбранной модели (рис. 7).

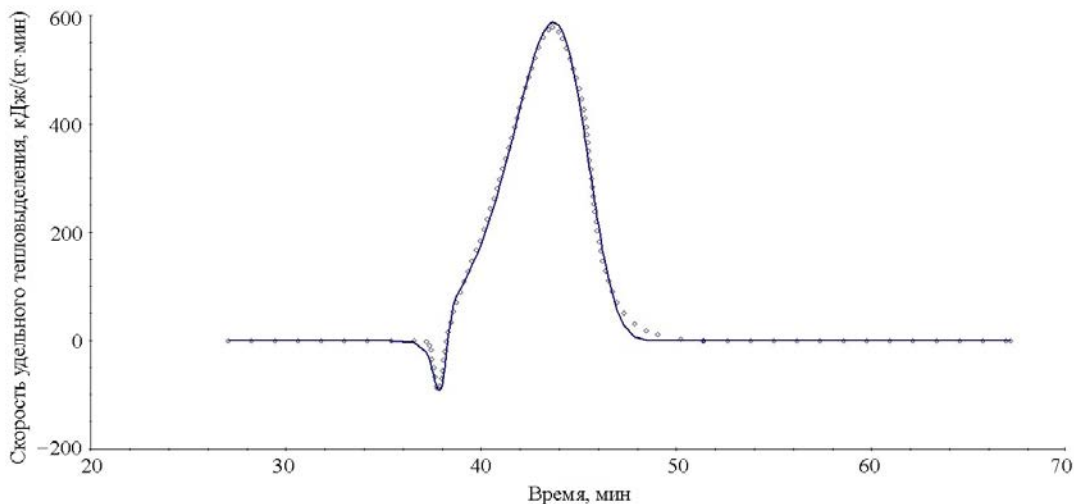


Рис. 7. Описание ДСК откликов термического разложения гексогена ТТ формальной моделью после параметрической идентификации: — – гексоген-ТТ, 5 °С/мин (расчет), \diamond – гексоген-ТТ, 5 °С/мин (эксперимент)

В табл. 1 представлены результаты параметрической идентификации кинетических моделей термического разложения исходного гексогена и гексогена ТТ, из которых видно различие кинетических параметров исследованных образцов.

Таблица 1

Значения параметров формальной кинетической модели термического разложения исходного гексогена и гексогена ТТ, построенной на основе экспериментальных ДСК данных термораспада ВВ при скоростях нагрева от 1 до 5 °С/мин

Стадия	Обозначение параметра	Размерность	Значение	
			гексогена исходного	гексогена ТТ
1. $A_{тв} \rightarrow A_{ж}$	Q	кДж / кг	-90,00	-70,00
2. $A_{ж} \rightarrow B$ Автокатализ	$\ln(k_0)$	$\ln(c^{-1})$	31,36	48,42
	E	кДж/моль	152,69	223,23
	$n1$	–	0,90	1,12
	$n2$	–	0,33	0,16
	$\ln(z_0)$	–	-5,000	$1,36 \cdot 10^{-6}$
	Ez	кДж/моль	33,56	43,86
	Q	кДж / кг	2850,00	2800,00

Анализ совокупности полученных значений параметров кинетических моделей термораспада, представленных в табл. 1, с учетом уравнений (1) и (2) показал, что:

– на плавление гексогена ТТ затрачивается заметно меньше энергии, чем на плавление исходного ВВ. Это может быть обусловлено изменением как теплофизических свойств ВВ (теплоемкость, теплопроводность и коэффициент теплового расширения) вследствие особенностей структуры частиц гексогена ТТ (наличия в его кристаллах бóльшего количества внутренних дефектов малого размера и практически отсутствия крупных дефектов), так и их размера;

– в обоих случаях первая стадия процесса термораспада протекает гораздо медленнее второй, при этом автокатализ сильнее выражен в исходном гексогене, для которого значение $z \ll 1$.

Поскольку зона плавления вещества является зоной мощного теплоотвода, то в процессе плавления прогрев твердых частиц ВВ вне зоны плавления происходит значительно медленнее. В связи с этим, в процессе плавления крупных частиц исходного гексогена возрастает вероятность накопления автокаталитических продуктов реакции разложения ВВ. Скорее всего, этот эффект будет еще более выражен в крупных квазизакрытых порах частиц исходного вещества (см. рис. 2, а). Следовательно, процесс термораспада исходного гексогена в целом будет идти быстрее по сравнению с более мелкими частицами гексогена ТТ.

Очевидно, что вещество, которое способно адсорбировать продукты разложения ВВ в системе «твердое ВВ–расплав» и не вступает в реакцию взаимодействия, как с продуктами разложения, так и с самим ВВ, может нивелировать выявленную разницу в кинетических параметрах термораспада гексогена относительно гексогена ТТ. Кроме того, в случае, если данное вещество обладает способностью «обволакивать» частицы ВВ с эффектом закупорки открытых пор дефектных кристаллов ВВ, следует ожидать эффекта выравнивания значений параметра $Q_{пл}$ процесса фазового перехода в гесогене и гексогене ТТ.

В рамках настоящей работы рассмотрено влияние полимерного связующего на кинетические параметры термического разложения гексогена серийного изготовления и гексогена ТТ при пластификации этих ВВ. Определение кинетических параметров термического разложения пластифицированных ВВ проводили на основании экспериментальных данных, полученных в условиях, аналогичных условиям проведения экспериментов с гексогеном и гексогеном ТТ.

Процедура построения кинетической модели термического разложения пластифицированных ВВ заключалась в параметрической идентификации кинетической модели термораспада, выбранной для гексогена и гексогена ТТ, для обеспечения удовлетворительного описания экспериментальных калориметрических откликов при термическом разложении пластифицированных ВВ на их основе. Результаты проведенных расчетно-экспериментальных кинетических исследований по определению параметров кинетической модели процесса термического разложения пластифицированных гексогена и гексогена ТТ представлены в табл. 2.

Таблица 2

Значения параметров формальной кинетической модели термического разложения пластифицированного гексогена и пластифицированного гексогена ТТ, построенной на основе экспериментальных ДСК данных термораспада этих ВВ при скоростях нагрева от 1 до 5 °С/мин

Стадия	Обозначение параметра	Размерность	Значение	
			пластифицированного гексогена	пластифицированного гексогена ТТ
1. $A_{ТВ} \rightarrow A_{Ж}$	Q	кДж/кг	–80	–80
2. $A_{Ж} \rightarrow B$	$\ln(k_0)$	$\ln(c^{-1})$	34,84	36,38
	E	кДж/моль	167,62	173,43

Окончание таблицы

Стадия	Обозначение параметра	Размерность	Значение	
			пластифицированного гексогена	пластифицированного гексогена ТТ
Автокатализ	$n1$	–	0,85	0,94
	$n2$	–	0,22	0,25
	$\ln(z_0)$	–	$-1,47 \cdot 10^{-3}$	-0,01
	Ez	кДж/моль	59,98	32,40
	Q	кДж/кг	2380	2700

Как следует из сравнения представленных в табл. 1 и 2 данных, наличие полимерного связующего в составе пластифицированного гексогена и пластифицированного гексогена ТТ приводит к тому, что значения параметров формальной кинетической модели термического разложения этих ВВ становятся близки между собой в отличие от их основных взрывчатых наполнителей: по термической стойкости пластифицированный гексоген становится сравним с пластифицированным гексогеном ТТ.

Заключение

Проведены расчетно-экспериментальные работы по оценке влияния размерных эффектов частиц гексогена, полученного методом термовакуумного осаждения, на его реакционную способность. С использованием дифференциальной микрокалориметрии показано, что термовакуумное осаждение ВВ приводит к изменению кинетических параметров его термического разложения относительно исходного образца.

На основании расчетных и экспериментальных данных, представленных в настоящей работе, высказано предположение о том, что в ВВ, претерпевающих плавление с разложением, существует некая зависимость реакционной активности вещества от размера и особенностей структуры частиц, участвующих в реакции, которая может быть связана с изменением свойств частицы при ее взаимодействии с адсорбируемыми продуктами разложения ВВ.

Установлено, что, несмотря на различие в кинетических параметрах термического разложения гексогена ТТ и исходного гексогена, наличие инертной пластифицирующей добавки в составе ВВ, изготовленных на основе этих ВВ, приводит к сближению этих ВВ по показателю термической стойкости.

Список литературы

1. Сергеев Г. Б. Нанохимия металлов // Успехи химии. 2001. Т. 70. С. 915–933.
2. Мильченко Д. В., Герман В. Н., Вахмистров С. А. и др. Структура и взрывчатые свойства тонких слоев вторичных ВВ, получаемых методом термовакуумной возгонки // Доклад на российско-китайский семинар «Энергетические материалы: фундаментальные исследования, жизненный цикл, безопасность». Н. Новгород, 26–28 ноября 2012 г.

3. Вахмистров С. А., Герман В. Н., Мильченко Д. В. Термовакuumное напыление или эпитаксия ВВ // Атом. 2014. № 64.

4. Мильченко Д. В., Губачев В. А., Андреевских Л. А. и др. Нано-структурированные ВВ, получаемые методом осаждения из газовой фазы. Особенности структуры и взрывчатых свойств // ФГВ. 2015. Т. 51, № 1. С. 96–101.

5. Коссой А. А. Обработка данных неадиабатической калориметрии для оценок кинетики в реакционно-опасных устройствах. Санкт-Петербург: ГИПХ, 2003.

6. Экспериментальное изучение кинетики разложения высокоэнергетических химических веществ методами сканирующей и адиабатической калориметрии. Методические рекомендации. Санкт-Петербург: ГИПХ, 2007.

7. Бенин А. И., Малинина И. В., Рипачев В. И. Программная система «Кинетика-1» для построения кинетического описания химических реакций в конденсированной фазе // Сб. «Автоматизация разработки технологических процессов» / Под ред. Ю. В. Шарикова. Л.: ГИПХ, 1984.

8. Ахметшин Ю. Г., Бенин А. И., Коссой А. А. Методология создания кинетических моделей химических реакций: Учебно-методическое пособие. Санкт-Петербург: Химинформ, 2013.

Influence of Dimensional Effects and Structure of RDX on its Reactivity

**P. S. Belukhina, V. A. Burnashov, S. A. Vakhmistrov, S. E. Grebennikova,
N. A. Miroshnichenko, Yu. V. Sheikov**

Presented the results of the computational and experimental work to assess the influence of the RDX particles size effects on its reactivity under temperature effect. The reactivity of RDX was assessed after obtaining by thermal vacuum recrystallization (RDX-TT), which leads to a significant change in the characteristic dimensions of the internal structure, and the crystals, and original substance (RDX) of serial production. For a comparative evaluation of the reactivity, the kinetic parameters of EM thermal decomposition process obtained under dynamic heating conditions were considered. Using differential scanning calorimetry, there were constructed thermal decomposition kinetic models (KM) of RDX and RDX-TT, which take into account the EM melting process and a catalytic effect of its decomposition products. The kinetic parameters of the model are determined. The results of the constructed KM verification are presented. It was shown that structural changes in RDX-TT – a decrease of a crystal size as well as an increase of intracrystalline defects – lead to a less pronounced autocatalysis relative to the initial sample. The method was showed for leveling the differences in the thermal decomposition kinetics of the investigated EM by introducing a plasticizer.

СОДЕРЖАНИЕ РАЗДЕЛА 10

<i>Морозов В. Н., Колесников С. В., Цетлин И. В., Профе В. Б., Иванов А. В., Дрожжин В. С., Скорочкин Ю. В., Куфтин А. А., Шеховцев С. С.</i>	
Повышение ударостойкости защищенных бортовых накопителей	170

РАЗДЕЛ 10

The number '10' is rendered in a large, 3D-style font. Inside the '0', there is a technical drawing of a building facade. The drawing shows a window with a metal grille and a door. Labels in blue text point to various parts: 'Пенопласт ППУ-305А' (Polystyrene foam PPU-305A) points to the wall insulation; 'Печатные платы' (Printed circuit boards) points to a vertical structure; 'max' is at the top of the window; and 'ОРИ' (Orientation) is on the right side.

**ИНЖЕНЕРНЫЕ
РАЗРАБОТКИ
И НОВЫЕ
ПРОМЫШЛЕННЫЕ
ТЕХНОЛОГИИ**

УДК 62-754

Повышение ударостойкости защищенных бортовых накопителей

**В. Н. Морозов, С. В. Колесников,
И. В. Цетлин, В. Б. Профе, А. В. Иванов,
В. С. Дрожжин, Ю. В. Скорочкин,
А. А. Куфтин, С. С. Шеховцев**

Изложены особенности проектирования приборов специального назначения в условиях ударных воздействий высокой интенсивности, проектирования элементов ударозащиты на основе синтактных пен. Приведены результаты экспериментальной отработки прибора с применением ударозащитного материала. Предложена конструкция защищенного бортового накопителя, отличающегося повышенной стойкостью к ударным воздействиям высокой интенсивности.

В состав современных бортовых устройств регистрации (БУР) входят защищенные бортовые накопители (ЗБН), обеспечивающие защиту информации с воздушного судна (ВС) в условиях действия различных внешних воздействующих факторов (ВВФ) при авиационном происшествии (АП) [1]. Наибольшее влияние на ЗБН оказывают следующие ВВФ: внешняя температура, ударные нагрузки, вода и агрессивные жидкости (топливо и прочие горючесмазочные вещества). При этом, как правило, потеря информации при АП происходит вследствие разрушения ЗБН при ударных и других механических нагрузках. Анализ причин потери информации ЗБН Су-24, сбитого турецкими военными над Сирией, показывает, что разрушение функциональных узлов ЗБН (печатные платы с микросхемами памяти и другими электрорадиоизделиями (ЭРИ) произошло именно вследствие экстремальных ударных нагрузок (рис. 1).

В соответствии с ОСТ 1 01080-95 «Устройства регистрации бортовые с защищенными накопителями. Общие технические требования» ЗБН должен сохранять свою работоспособность при воздействии:

- одиночного удара полусинусоидальной формы с максимальной нагрузкой до 3400 g с длительностью импульса ~6,5 мс;
- статической нагрузки величиной до 22,15 кН, прилагаемой непрерывно по каждой из трех осей в течение 5 мин, но не одновременно;
- прокалывающего удара стального бруса массой 226 кг с высоты 3 м на одну поверхность. Площадь контакта стержня с ЗБН – 0,32 см².



Рис. 1. Внешний вид ЗБН Су-24 после катастрофы

Практика расследования АП также показывает, что действие на ЗБН ВВФ происходит, как правило, в различных сочетаниях [1], но преобладают механические факторы:

- в 70 % АП – воздействия механических и тепловых нагрузок;
- в 20 % АП – воздействия механических нагрузок и воды (агрессивных жидкостей);
- в 10 % АП – другое сочетание факторов.

РФЯЦ-ВНИИЭФ на протяжении многих лет успешно занимается разработкой приборов специального назначения для эксплуатации в условиях повышенных механических нагрузок, в т. ч. ударных воздействий большой интенсивности. Многолетний опыт разработки и отработки малогабаритной бортовой аппаратуры (МБА) показывает, что полное ее заполнение жесткими компаундами или пенопластами (например, ППУ-305А) с целью повышения жесткости элементов конструкции и ЭРИ является достаточно эффективным средством защиты от механических ВВФ [2].

На рис. 2 показан внешний вид прибора до и после испытания на ударные воздействия с максимальной перегрузкой ~ 10000 g и длительностью ~ 7 мс (рис. 3). Конструкция данного прибора показана на рис. 4, внутренний объем прибора заполнен жестким компаундом (пенопласт ППУ-305А). Прибор сохраняет работоспособность в процессе ударного воздействия (рис. 3) и после него.



Рис. 2. Внешний вид прибора до и после ударного воздействия с формой, показанной на рис. 3:
а – до удара, б – после удара

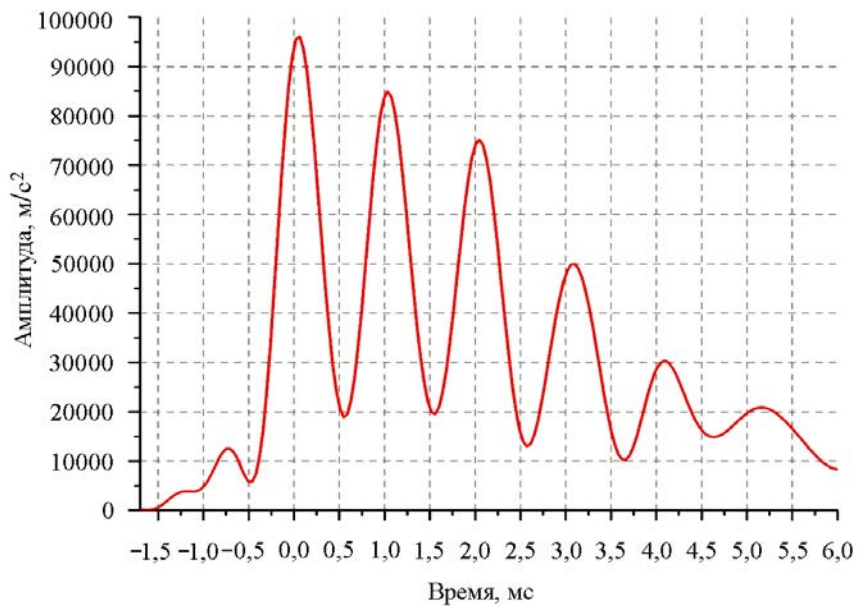


Рис. 3. Параметры испытательного ударного воздействия

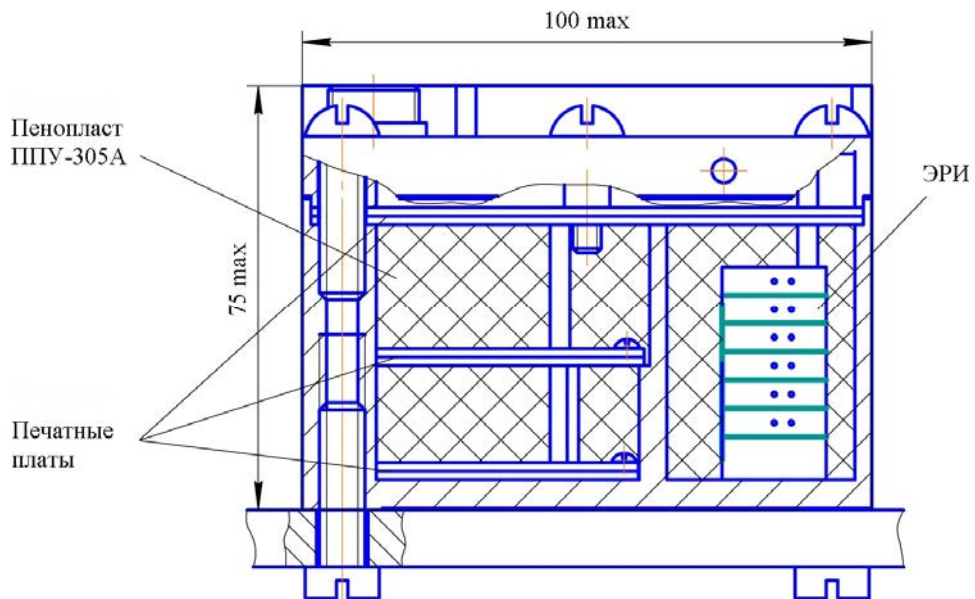


Рис. 4. Конструкция прибора, заполненного пенопластом ППУ-305А

Тем не менее, использование такого способа защиты от механических ВВФ в конструкции ЗБН ВС вряд ли может найти широкое применение из-за одного значительного недостатка – при полном заполнении аппаратуры жесткими компаундами и пенопластами прибор становится практически неремонтопригодным во время эксплуатации.

В качестве одного из перспективных средств защиты от механических воздействий может быть использовано полное заполнение ЗБН материалом на основе полых расширяющихся полимерных микросфер (синтактных пен). При фиксации или при формовании такого материала перемещения его компонентов минимальны, сравнимы с размером микросферы. Средний размер исходных частиц составляет 10–30 мкм. Предложена технология, основанная на смешивании полимерных нерасширенных микросфер с различными низкоплотными микросферами – органической или неорганической природы. При нагревании нерасширенные полимерные микросферы расширяются и заполняют промежутки между другими микросферами, образуя однородную среду. Технология позволяет создавать на основе смесей полых расширяющихся полимерных микросфер с различными низкоплотными микросферами заполнение с широким диапазоном механических свойств, т. е. фактически создавать требуемый под конкретное применение материал.

Важным отличием такой технологии заполнения от традиционной (заполнение аппаратуры пенопластом ППУ-305А) является то, что прибор помещается в печь и подвергается нагреву до температуры расширения микросфер. В настоящий момент удалось создать синтактную пену с приемлемыми характеристиками для защиты ЗБН от механических воздействий при температуре спекания 80–90 °С. Нагрев производится со скоростью 1–2 °С/мин, при достижении температуры расширения микросфер прибор, заполненный синтактной пеной, выдерживается при данной температуре в течение 60 мин. По истечении времени выдержки нагрев печи прекращается и печь с макетом охлаждается до 60 °С. Затем прибор охлаждается до нормальной температуры.

В случае необходимости замены в аппаратуре (заполненной синтактной пеной) ЭРИ или других элементов конструкции (например, при ремонте или доработке) синтактная пена без особых усилий выбирается из него с помощью скальпеля или специального растворителя. ЭРИ извлекается и заменяется; объем, из которого выбрана пена, заполняется недостающей смесью. После доработки прибор повторно нагревается для формования досыпанной пены. На рис. 5 показан внешний вид синтактной пены в приборе и печатной платы с ЭРИ после очистки синтактной пены, на рис. 6 – результаты испытаний макета прибора, заполненного синтактной пеной на ударное воздействие.

Данная технология является наиболее перспективной для защиты ЗБН от механических воздействий.

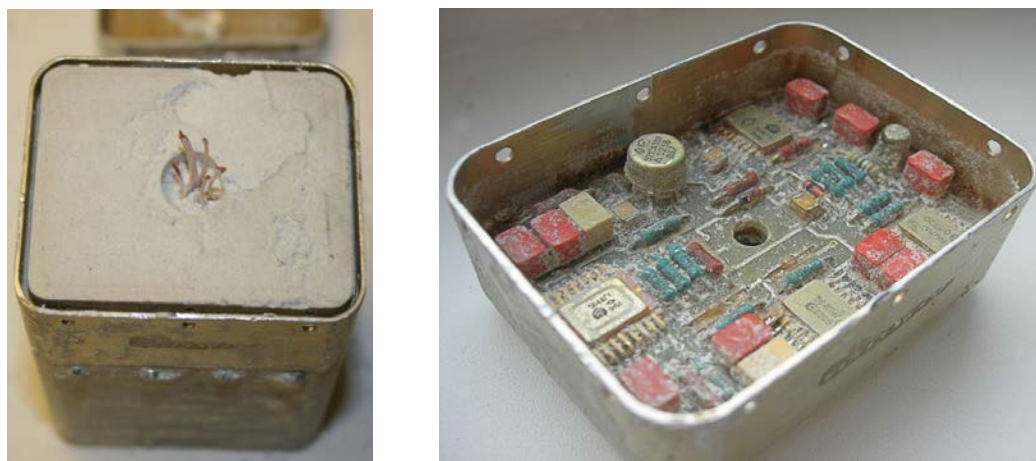


Рис. 5. Внешний вид прибора, заполненного синтактной пеной, и печатной платы с ЭРИ после очистки синтактной пены

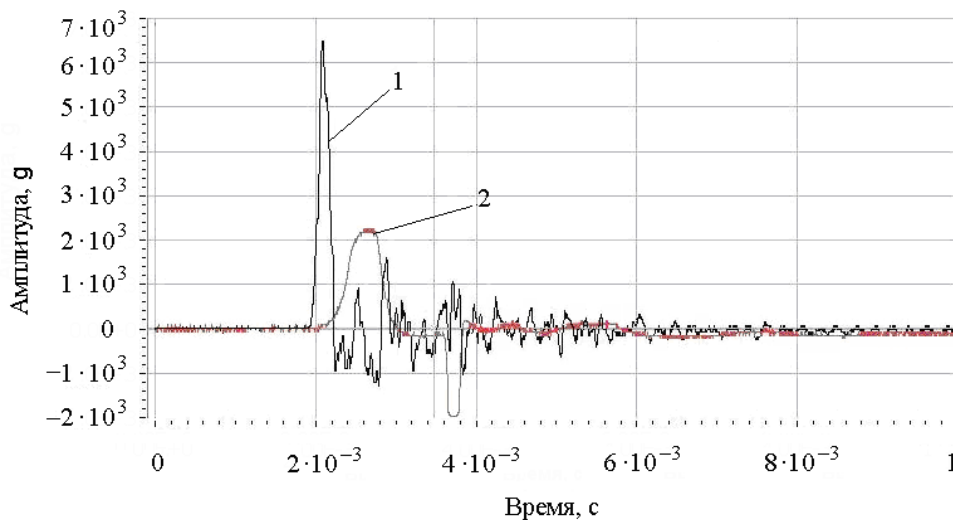


Рис. 6. Результаты испытания аппаратуры, заполненной синтактной пеной, на ударное воздействие: 1 – исходное ударное воздействие (внешнее воздействие на аппаратуру); 2 – ударное воздействие на ЭРИ, защищенные синтактной пеной

Для значительного снижения амплитуды ударного воздействия устройства ударозащиты конструкций ЗБН с использованием синтактных пен должны быть выполнены в виде прокладок, устанавливаемых в местах крепления печатных плат (ПП) или в виде демпфирующей прослойки, равномерно распределенной по всей поверхности защищаемого объекта в направлении, перпендикулярном направлению ударного воздействия. Такой тип крепления критичных к ударным нагрузкам элементов получил название «плавающая конструкция» [3].

Таким образом, можно представить конструкцию ЗБН с повышенной стойкостью к ударным воздействиям большой интенсивности и другим механическим ВВФ. На рис. 7 показана конструкция ЗБН с применением описанных выше технологий защиты от ВВФ по ОСТ 101080-95.

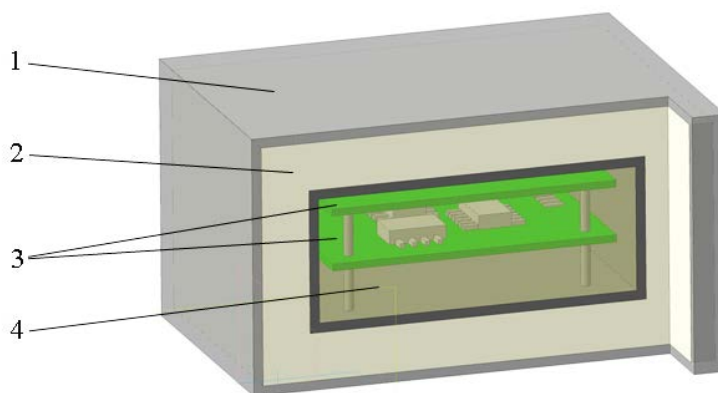


Рис. 7. Конструктивная схема ЗБН с повышенной стойкостью к ударным воздействиям большой интенсивности: 1 – жесткий (титановый или стальной) корпус для защиты от механических ВВФ проникающего типа; 2 – защита (асбест или другие материалы) от ВВФ теплового типа (пожар и т. д.); 3 – печатные платы ЗБН с ЭРИ; 4 – виброударозащитный материал (синтактные пены)

Накопленный в РФЯЦ-ВНИИЭФ опыт создания специальной МБА, стойкой к ударным и другим механическим воздействиям большой интенсивности, может быть положен в основу разработки новых или модернизации существующих ЗБН повышенной стойкости к ударным воздействиям с амплитудой более 6000 g.

Список литературы

1. Семенов А. Что мешает расследованию авиапроисшествия // Авиапанорама. 2010. № 3. С. 26–27.
2. Иванов А. В., Куфтин А. А., Демарева А. И. и др. Защита малогабаритной бортовой аппаратуры от вибрационных и ударных воздействий // Проектирование и технология электронных средств. 2015. № 2. С. 35–39.
3. Пат. 2385554 РФ, МПК H05K 5/00. Способ защиты аппаратуры от ударных воздействий / А. В. Иванов, П. В. Хохлов, В. С. Дрожжин, Ю. В. Скорочкин, В. А. Денисова // Бюл. 2010. № 9.

Shock Resistance Growing of Protected Board Storage Devices

V. N. Morozov, S. V. Kolesnikov, I. V. Tsetlin, V. B. Profe, A. V. Ivanov, V. S. Drozhzhin,
Yu. V. Skorochkin, A. A. Kuftin, S. S. Shekhovtsev

The design features of special destination devices in conditions of high intensive shock are posed in the article. The design features of shock defense elements using syntactic foams are posed. The results of device's experimental researches using shock resistant material are presented. The construction of protected board storage device is suggested, differing high resistance to high intensive shock.

СОДЕРЖАНИЕ РАЗДЕЛА 11

Басалов В. Г., Холостов А. А.

Перспективная гибридная топология KNS для систем межпроцессорных обменов на базе СМПО-10G 178

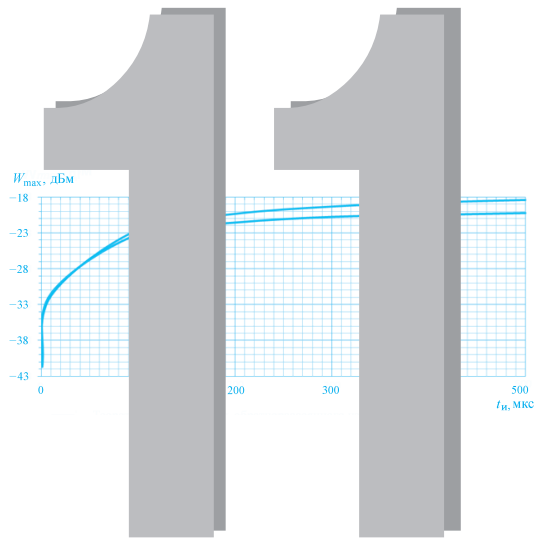
Балашов К. И., Шубин В. В.

Контроль нарушений волоконно-оптических линий в распределенных информационно-вычислительных сетях методами интегральной рефлектометрии и прямого детектирования 190

Федоров А. А., Быков А. Н.

Сравнение двух методов распараллеливания прогонки на гибридных ЭВМ с графическими ускорителями 200

РАЗДЕЛ



ЭВМ И НОВЫЕ ВОЛОКОННО- ОПТИЧЕСКИЕ ЛИНИИ

УДК 004.722

Перспективная гибридная топология KNS для систем межпроцессорных обменов на базе СМПО-10G

В. Г. Басалов, А. А. Холостов

Представлено описание гибридной топологии KNS для коммуникационных сетей мультипроцессорных систем, основанных на системе межпроцессорных обменов СМПО-10G. Описаны созданные для этой топологии адаптивные маршрутные алгоритмы, позволяющие строить кратчайшие пути передачи сообщений, свободные от возникновения состояний взаимных блокировок, а также обеспечивающие высокую отказоустойчивость коммуникационной сети и ее сбалансированную загрузку. Приведен сравнительный анализ основных технико-архитектурных характеристик популярных топологий, применяемых при создании коммуникационных сетей высокопроизводительных многопроцессорных вычислительных комплексов.

Введение

На протяжении ряда лет ведутся работы по созданию отечественной системы межпроцессорного обмена (СМПО) для построения многопроцессорных вычислительных комплексов (МВК) различного класса. Отечественные СМПО использовались при создании МВК МП-3, МП-3Т [1], МП-СМПО-2D и МП-СМПО-3D.

Разработанная аппаратно-программная архитектура СМПО-10G является основой создания высокоскоростных коммуникационных сетей (КС) для многопроцессорных вычислительных систем разного уровня производительности – от компактных вычислительных систем до больших МВК, состоящих из тысяч вычислительных узлов. 64-х-узловая вычислительная система МП-СМПО-3D, созданная на базе архитектуры СМПО-10G с топологией «мультистор», выдержала приемочные испытания и успешно проходит опытную эксплуатацию.

Создание современных высокоскоростных КС, объединяющих десятки тысяч вычислительных модулей (ВМ) в единую суперкомпьютерную вычислительную среду, ставит перед разработчиками много сложных технических проблем. Основные требования к современным КС: высокая скорость передачи данных (быстродействие); расширяемость; простота; надежность; отказоустойчивость; низкая стоимость и потребляемая мощность; управление нагрузкой каналов (адап-

тируемость). Все эти требования взаимосвязаны, и удовлетворение только отдельных из них не приведет к успешной коммерциализации КС. Тем не менее, самой важной характеристикой при работе в МВК является скорость передачи данных (пропускная способность) КС в условиях реальной нагрузки МВК.

Топология КС в значительной степени определяет интегральное быстродействие и технико-экономическую эффективность СМПО и, как следствие, всего МВК. Топология КС во многом зависит от архитектуры используемых аппаратных средств.

В настоящее время иерархическая организация КС приобретает характер фактического стандарта. Характерная общая черта суперкомпьютеров IBM Power 775, Cray XC30 и Tianhe-2 – их иерархическая архитектура и иерархическая КС. Главный элемент такой сети – одночиповый коммутатор-маршрутизатор со множеством сетевых каналов связи (100 и более высокоскоростных последовательных каналов на кристалл). Через процессорные интерфейсы к таким маршрутизаторам подключаются узлы – серверные платы. Маршрутизаторы обеспечивают соединения ВМ на трех уровнях иерархии, реализуя при этом и переход с одного уровня на другой. Для IBM Power 775 и Cray XC30 реализованы соединения типа «каждый с каждым», и в перспективе такую же сеть следует ожидать в Tianhe-2, хотя сейчас в ней используется топология «толстого» дерева, но с соединением «каждый с каждым» внутри процессорной стойки. Маршрутизатор NRC Chip уже сейчас позволяет перейти к иерархической сети, но, скорее всего, он будет переделан и приближен к IBM HUB Chip [2].

Архитектура СМПО-10G основывается на двухкомпонентном аппаратном модуле, позволяющем, ориентируясь на доступные в России технологии, использовать его как основной составной элемент КС высокопроизводительных МВК. Аппаратный модуль состоит из адаптерного и коммутаторного блоков. Адаптерный блок представляет собой коммутатор-маршрутизатор для организации одного процессорного интерфейса для связи с ВМ и обеспечения работы четырех сетевых каналов (суммарной пропускной способностью 160 Гбит/с) для внешних связей. Коммутаторный блок представляет собой полный матричный коммутатор-маршрутизатор с десятью сетевыми каналами связи (суммарная пропускная способность – 400 Гбит/с), обеспечивающий передачу сообщений между этими каналами по запрограммированным ранее маршрутным алгоритмам. Каждый порт коммутатора как адаптерного, так и коммутаторного блока имеет два виртуальных канала.

Для архитектуры СМПО-10G ранее рассматривалось несколько пространственно расширяемых топологий КС: Tree3DTorus, мультитор и NTorus (тор гиперкубов третьей степени) [3]. Перспективность иерархической топологии для архитектуры СМПО-10G невелика, так как небольшое количество портов в коммутаторном блоке, обусловленное возможностями российских технологий, не позволяет создать большую КС с действительно малым диаметром. Дополнительными препятствиями являются разработка и реализация довольно сложного алгоритма маршрутизации для таких сетей.

Гибридная топология KNS на основе архитектуры СМПО-10G

Топологии КС принято разделять на две группы: прямые (direct) и непрямые (indirect).

Непрямая топология ограничивает возможность поэтапного расширения МВК и не обеспечивает линейной зависимости стоимости МВК от ее производительности, что ограничивает ее применение в действительно больших КС, объединяющих сотни тысяч ВМ. КС с непрямой топологией имеет небольшой диаметр, зависящий от количества уровней сети, и соответ-

венно высокие технико-архитектурные характеристики. Однако дальнейшее уменьшение диаметра КС обеспечивается только уменьшением количества уровней, которое достигается ростом количества портов в коммутаторах, а следовательно, значительным увеличением их стоимости и использованием дорогостоящих технологий. К непрямым топологиям относится, например, часто используемая в существующих МВК, как зарубежных, так и отечественных, топология Fat Tree.

Прямые топологии, наоборот, отличаются дешевизной комплектующих (коммутаторы, как правило, имеют небольшое число портов) и хорошей масштабируемостью, в основном не зависящей от количества портов. Но это обуславливает значительное увеличение диаметра КС и средней длины пути сообщения, повышает вероятность конфликтов сообщений и соответственно снижает пропускную способность, т. е. ухудшает технико-архитектурные характеристики всей КС в целом. К прямым топологиям относятся широко известные топологии Mesh, Tor, Hypercube и TOFU.

Гибридная топология KNS, предложенная испанскими учеными на международной конференции в сентябре 2013 г. в Барселоне [4] для реализации ВС экзафлопсной производительности, представляет собой попытку совместить в одной сети лучшие черты прямых и не прямых топологий, т. е. добиться значительного уменьшения диаметра больших КС, стоимости, энергозатрат при обеспечении высокой пропускной способности.

Свое название топология KNS получила от трех основных своих параметров: K – количество ВМ в одном измерении (координатном направлении), N – количество измерений в прямой топологии и S – количество уровней в не прямом участке топологии. ВМ в этой топологии располагаются (номерируются) ортогонально по измерениям, аналогично прямым топологиям Mesh или Torus. Все ВМ, имеющие одинаковое значение одной из координат (например, все ВМ с координатами (0,0); (0,1); (0,2); (0,3), т. е. принадлежащие оси координат OX), объединяются между собой с помощью либо одного полноматричного коммутатора, как представлено на рис. 1, либо (при недостаточном количестве портов в коммутаторе) – в не прямые топологии, например Fat Tree, как показано на рис. 2.

КС с топологией KNS, построенная на основе аппаратного модуля СМПО-10G, может иметь от одного до четырех измерений. Максимальное количество измерений КС с топологией KNS определяется количеством портов адаптерного блока в СМПО-10G, внутренний коммутатор которого имеет четыре внешних сетевых порта и один процессорный интерфейс. Соединение ВМ одного измерения посредством одного коммутаторного блока из СМПО-10G, т. е. создание 4D KNS топологии с размерами $10*4*1$, позволит объединить до 10000 узлов с диаметром КС, равным 8.

Для топологий с количеством ВМ в одном измерении более 10 можно соединять ВМ в одном измерении с использованием нескольких коммутаторных блоков, которые, в свою очередь, объединены с помощью не прямых топологий (например, Fat Tree или некоторого «обезжиренного» дерева), и таким образом создавать КС для МВК любого размера. Разработанная система маршрутизации аппаратного модуля СМПО-10G с топологией KNS позволяет это сделать. Она допускает использование разного количества ВМ в различных измерениях, а также применение для различных измерений как разных не прямых топологий, так и разного количества уровней этих топологий для объединения ВМ.

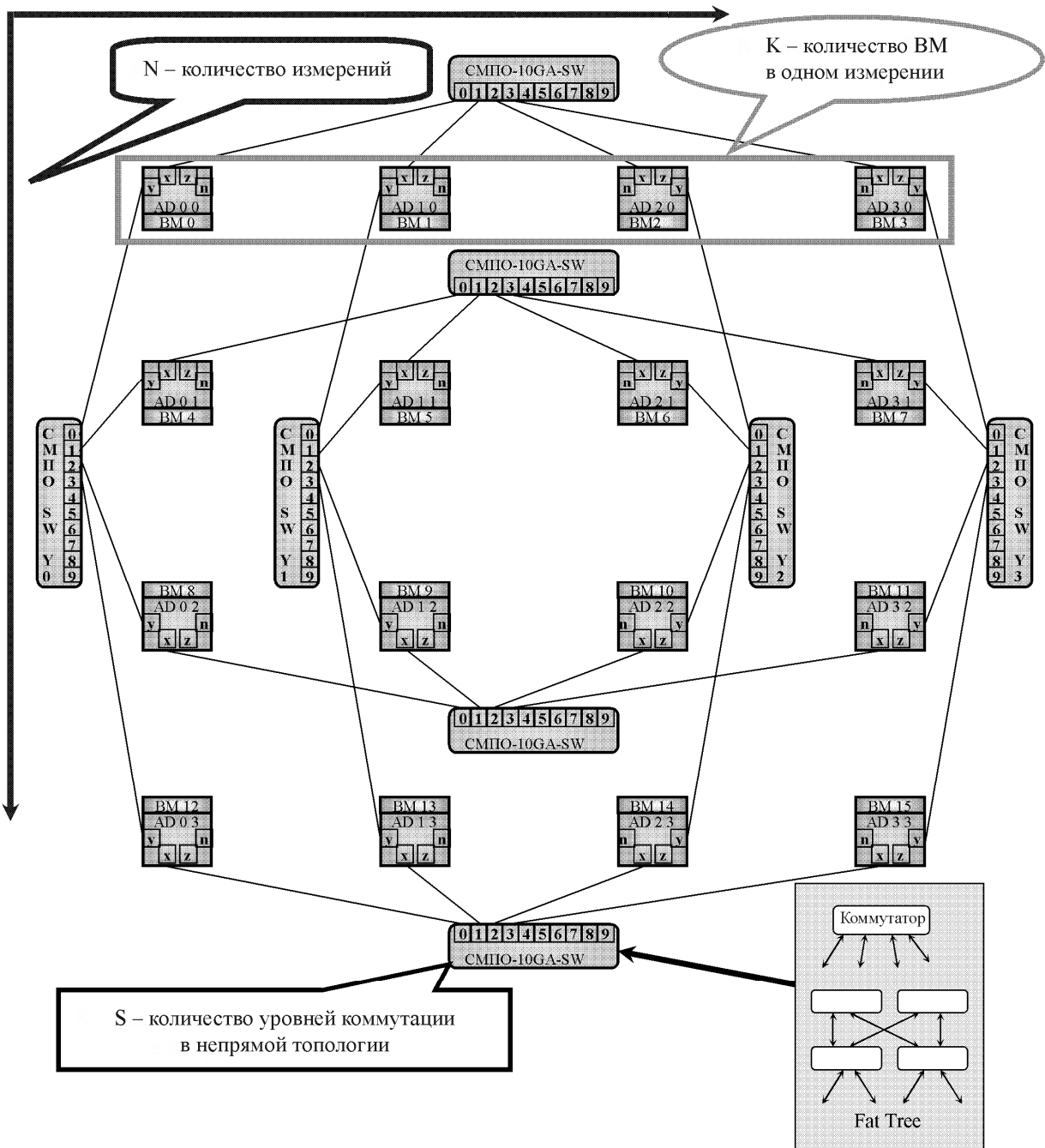


Рис. 1. Гибридная топология 2D KNS (4*2*1) на основе архитектуры CMPO-10G

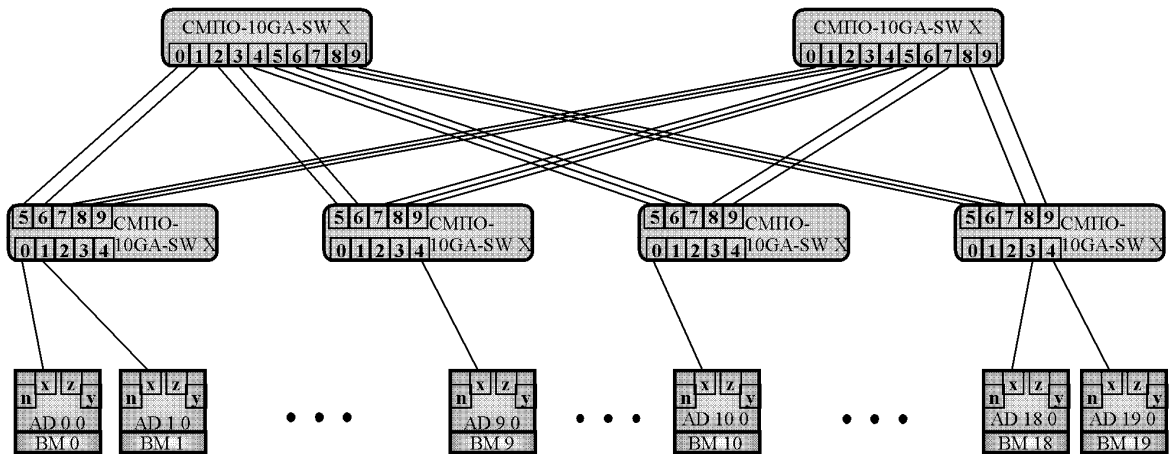


Рис. 2. Гибридная топология 1D KNS (20*1*2) на основе архитектуры CMPO-10G

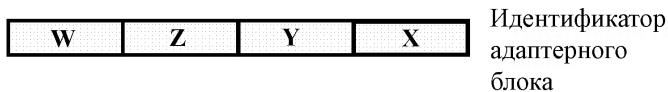


Рис. 3. Формат идентификаторов адаптерных блоков

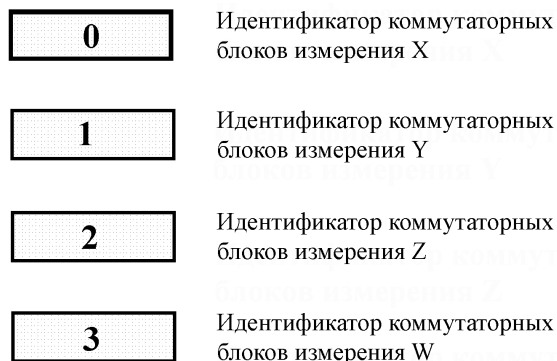


Рис. 4. Форматы идентификаторов коммутаторных блоков для разных измерений

Для топологии KNS были разработаны принципы идентификации коммутаторных и адаптерных блоков CMPO-10G. Размер идентификаторов узлов КС CMPO-10G традиционно, как и для других топологий, составляет четыре байта. Однако коммутаторные и адаптерные блоки имеют разную структуру идентификации. В идентификаторах адаптерных блоков отводится по одному байту на каждое измерение (рис. 3), что позволяет идентифицировать более четырех миллиардов ВМ.

Идентификаторы коммутаторных блоков, принадлежащих одному измерению, одинаковы и имеют значение номера байта, соответствующего этому измерению в идентификаторе адаптерного блока (рис. 4).

Адаптивный метод выбора оптимального маршрута сообщения

Применение топологии KNS позволяет значительно упростить процесс выбора оптимального маршрута сообщения, по сравнению с тороидальными топологиями, например, Torus или мультитор [3]. Это упрощение достигается за счет уменьшения количества типов циклов, угрожающих возникновением состояний взаимных блокировок. В топологии KNS отсутствует тип циклов, образуемый обратной связью между узлами одного измерения. Здесь остались только циклы, образуемые решетчатой структурой расположения ВМ. Для устранения возникновения состояний взаимной блокировки при передаче сообщений традиционно используется специализированный алгоритм DOR (Dimension-order routing), или, как его еще называют, XY-routing алгоритм [5]. В случае отказа части оборудования происходит автоматический переход к адаптивной маршрутизации за счет использования двух виртуальных каналов VC0 и VC1 адаптерных блоков. Следует заметить, что в коммутаторных блоках СМПО-10G нет необходимости вводить виртуальные каналы для предотвращения состояний взаимной блокировки, так как участки не прямой топологии заведомо топологически свободны от циклов.

Поскольку аппаратный модуль СМПО-10G состоит из двух типов устройств – адаптерных и коммутаторных блоков, необходима разработка двух соответствующих алгоритмов маршрутизации, обеспечивающих гарантированную доставку пакета из ВМ-источника в ВМ-приемник.

В работе [6] представлен метод алгоритмически коммутируемой маршрутизации для прямых топологий на базе СМПО-10G. Идея этого метода заключается в том, что вычисление оптимального выходного порта для передачи каждого транзитного информационного сообщения осуществляется коммутатором непосредственно в момент передачи. В данной работе этот метод адаптирован к топологии KNS.

Адаптивный маршрутный алгоритм адаптерного блока

Для принятия решения о дальнейшей маршрутизации пакета адаптерный блок сравнивает идентификатор ВМ-приемника $\{X_D, Y_D, Z_D, W_D\}$ с идентификатором текущей адаптерной платы $\{X_C, Y_C, Z_C, W_C\}$. Сравнение производится вычитанием значений полей X_D, Y_D, Z_D, W_D из значений полей X_C, Y_C, Z_C, W_C . В результате получаем разность $\{X_R, Y_R, Z_R, W_R\}$. Если $\{X_D, Y_D, Z_D, W_D\}$ и $\{X_C, Y_C, Z_C, W_C\}$ совпали, т. е. все значения полей X_R, Y_R, Z_R, W_R равны 0, пакет достиг ВМ-приемника, сообщение передается процессорному интерфейсу. В противном случае пакет считается транзитным и начинается поиск оптимального выходного порта с помощью алгоритма DOR.

Выполнение алгоритма всегда начинается с анализа значения поля X_R . Если оно не равно 0, то пакет отправляется в порт, соответствующий координате X, с виртуальным каналом VC0. Если передача пакета в соответствующий порт невозможна, то выбирается первый способный к передаче пакетов порт с виртуальным каналом VC1, если таких нет, то делается вывод о неисправности сети.

Если значение поля X_R равно 0, проводится такой же анализ для значения полей Y_R, Z_R , и W_R , пока не будет найден оптимальный выходной порт.

Адаптивный маршрутный алгоритм коммутаторного блока

Как упоминалось ранее, архитектура СМПО-10G позволяет с использованием одиночного коммутаторного блока на прямом участке топологии 4D KNS (размерностью $10*4*1$) построить коммуникационную сеть, объединяющую до 10000 ВМ. При этом алгоритм маршрутизации очень прост и заключается в том, что маршрутизатор, анализируя четырехбайтовый адаптерный идентификатор (он же адрес ВМ-приемника), находит номер байта, совпадающий с идентификатором коммутаторного блока, и значение этого байта является оптимальным номером выходного порта. Если этот порт неспособен к передаче пакета, выбирается любой порт, через который можно отправить пакет. Реализация этого алгоритма не требует никаких подготовительных действий.

Для МВК большого размера, когда не прямая часть топологии KNS представляет собой многоуровневое дерево, разработана универсальная табличная маршрутизация, т. е. выходной порт для пакета выбирается из заранее созданных и загруженных в коммутаторные блоки СМПО-10G маршрутных таблиц. Таблицы, содержащие до 30 элементов, позволяют создавать вычислительные системы до 810000 ВМ.

Таблица представляет собой массив данных, где индексом является значение байта, соответствующего измерению (координате) коммутаторного блока в адресе пакета, а результатом является номер оптимального выходного порта. Например, в коммутаторных блоках измерения X индексом таблицы будет значения нулевого байта в адресе пакета, в коммутаторных блоках измерения Y – значение первого байта в адресе пакета, и т. д.

Маршрутные таблицы рассчитываются заранее с учетом параметров МВК. При топологии KNS таблицы для соответствующих коммутаторных блоков одного измерения будут одинаковы. Малое разнообразие и небольшой размер таблиц значительно упрощают процесс их создания.

Для увеличения надежности системы возможно использование адаптивной маршрутизации с увеличением таблицы в два раза для хранения основного и альтернативного выходных портов.

Характеристики коммуникационных сетей с топологией KNS

Количество ВМ в МВК, использующем КС с топологией KNS, определяется по формуле:

$$N_{\text{ВМ}} = \prod_{i=1}^n K_i, \text{ где } n - \text{ количество измерений в топологии KNS (для СМПО-10G } 1 \leq n \leq 4); K_i -$$

количество ВМ в i -м измерении.

МВК, содержащий $N_{\text{ВМ}}$ ВМ, включает в себя соответственно и $N_{\text{ВМ}}$ адаптерных блоков.

Общее количество коммутаторных блоков в МВК с топологией KNS определяется по формуле:

$$V_{\text{КМ}} = \sum_{i=1}^n \left(V_i \prod_{j=1, j \neq i}^n K_j \right), \text{ где } V_i - \text{ количество коммутаторных блоков в дереве не прямой то-}$$

пологии i -го измерения.

Приведем другие важные характеристики КС, описание которых дано в работе [4].

Одной из важнейших характеристик коммуникационной сети является ее диаметр. Диаметр топологии KNS определяется по формуле: $D = \sum_{i=1}^n (2 + 2(S_i - 1))$, где S_i – количество уровней не прямой топологии в i -м измерении. Величина D может охарактеризовать максимально необхо-

димое время для передачи данных между ВМ, поскольку время передачи обычно прямо пропорционально длине пути. Отметим также, что минимальная дистанция в топологии KNS равна двум.

Топология KNS обладает свойством полной бисекции, и ее ширина равна $N_{\text{ВМ}}/2$ при любом разделении вычислительной системы пополам.

Значение связности в топологии KNS равно n . Оно определяется количеством измерений топологии KNS, а, следовательно, количеством задействованных сетевых каналов связи адаптерных блоков.

Устойчивость к неисправностям повышается с увеличением количества измерений в топологии KNS. Это достигается за счет увеличения количества альтернативных маршрутов и реализации адаптивных маршрутных алгоритмов, обеспечивающих обход неисправных участков.

Стоимость – показатель, который может быть определен, например, как общее количество каналов связи в КС МВК. Стоимость КС с топологией KNS можно определить по формуле:

$$F_{\text{КМ}} = \sum_{i=1}^n \left(F_i \prod_{j=1, i \neq j}^n K_j \right)$$
, где F_i – количество каналов связи в дереве не прямой топологии i -го измерения.

Сравнение характеристик топологий коммуникационных сетей

На рис. 5–7 (см. также цветную вкладку) представлено сравнение основных технико-архитектурных характеристик (диаметр, ширина бисекции и стоимость, выраженная в количестве соединительных кабелей) двух различных топологий КС на базе архитектуры СМПО-10G, топологий КС на базе архитектуры InfiniBand (с 36-портовыми коммутаторами) и топологии КС на базе архитектуры «Ангара» для МВК, объединяющих разное количество ВМ.

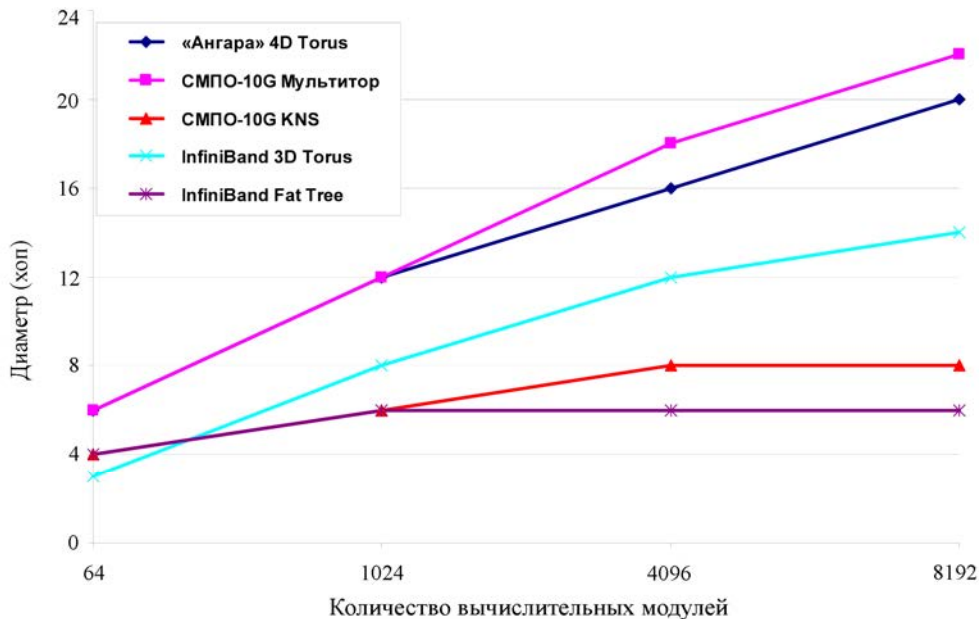


Рис. 5. Зависимость диаметра коммуникационных сетей от количества вычислительных модулей разных топологий

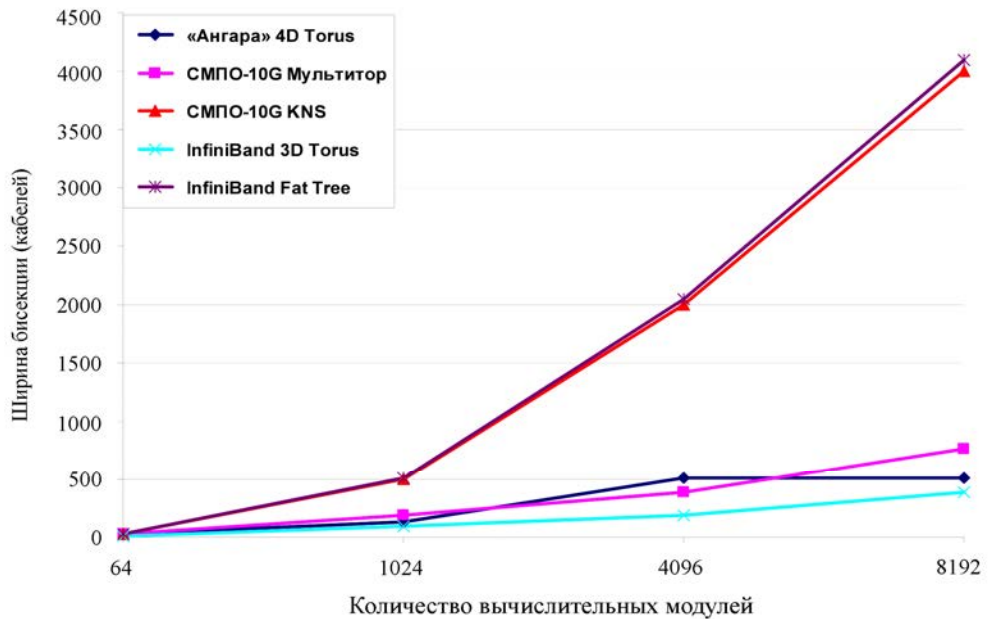


Рис. 6. Зависимость ширины бисекции коммуникационных сетей от количества вычислительных модулей разных топологий

Из рис. 5 и 6 видно, что диаметры (лучшие показатели имеют меньшие значения) и бисекции (лучшие показатели – с большими значениями) КС базе архитектуры СМПО-10G с топологией KNS незначительно уступают только КС на базе архитектуры InfiniBand с топологией Fat Tree, но при этом значительно опережают другие топологии.

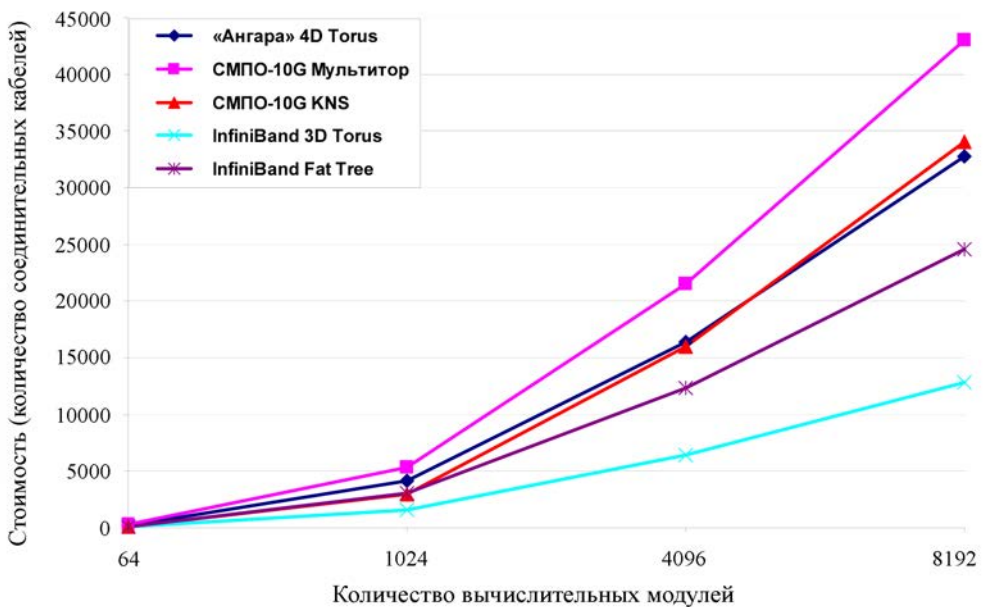


Рис. 7. Зависимость стоимости (количество соединительных кабелей) коммуникационных сетей разных топологий от количества вычислительных модулей

Из рис. 7 видно, что стоимость КС, выраженная через количество каналов связи, с архитектурой СМПО-10G и топологией KNS ниже, чем стоимость КС с архитектурой СМПО-10G и топологией «мультитор», практически совпадает со стоимостью КС с архитектурой «Ангара» и топологией 4-D Torus и выше, чем стоимость КС с архитектурой InfiniBand, особенно с топологией 3-D Torus. При этом важно отметить, что коммутаторные блоки InfiniBand более чем в 3 раза сложнее (по числу портов), чем коммутаторные блоки СМПО-10G.

Заключение

Гибридная топология KNS полностью адаптирована к архитектуре СМПО-10G. Для адаптерных и коммутаторных блоков разработаны механизмы идентификации и соответствующие адаптивные маршрутные алгоритмы, обеспечивающие устойчивое к неисправностям функционирование КС.

Сравнение основных технико-архитектурных характеристик популярных топологий, применяемых при создании СМПО суперЭВМ, показало, что КС на базе архитектуры СМПО-10G с топологией KNS имеют характеристики, в основном сравнимые с характеристиками КС, создаваемых на базе архитектуры InfiniBand с топологией Fat Tree.

Список литературы

1. Вихарев В. М. Сапронов С. И. Принципы программной организации коммуникационной системы мультипроцессора МП-3 // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. 1997. Вып. 2. С. 79–84.
2. Горбунов В., Елизаров Г., Эйсымонт Л. Эксафлопсные суперкомпьютеры: достижения и перспективы // Открытые системы. 2013. № 7. С. 10–14.
3. Басалов В. Г., Козлов Д. О., Холостов А. А. Топология «Мультитор» для высокопроизводительной и устойчивой к неисправностям коммуникационной сети с архитектурой СМПО-10G // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. 2015. Вып. 3. С. 76–84.

4. Roberto Penaranda, Crispin Gomez, Maria E. Gomez, Pedro Lopez, Jose Dvato. The K-ary N-direct S-indirect family of topologies for large-scale interconnection network // The Journal of Supercomputing. 2016. Vol. 72. P. 1035–1062. [ресурс Интернет] <http://doi.org/10.1007/s11227-016-1640-z>.

5. Dally W., Towles B. Principles and Practices of Interconnection Networks. San Francisco: Morgan Kaufmann Publishers, 2004.

6. Басалов В. Г., Вялухин В. М. Адаптивная система маршрутизации для отечественной системы межпроцессорных обменов СМПО-10G // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. 2012. Вып. 3. С. 64–70.

The Promising Hybrid Topology Kns for Interprocessor Communication Systems on the Basis of SMPO-10G

V. G. Basalov, A. A. Kholostov

Provides a description of the hybrid topology KNS for communication networks of multiprocessor systems on the basis of SMPO-10G system for interprocessor communications. The adaptive routing algorithms developed for this topology are described, which allow building the shortest message paths free of interlocking state and provide a high level of fault tolerance of the communication network and its balanced loading. Comparative analysis of the main architectural and technical characteristics of most popular topologies used to create communication networks for high-performance multiprocessor computing systems is presented.

Контроль нарушений волоконно-оптических линий в распределенных информационно- вычислительных сетях методами интегральной рефлектометрии и прямого детектирования

К. И. Балашов, В. В. Шубин

Представлены результаты разработки способа контроля нарушений волоконно-оптических линий в распределенных информационно-вычислительных сетях методами интегральной рефлектометрии и прямого детектирования. Показано, что недостаток оптической рефлектометрии во временной области – слабый сигнал обратного рассеяния – можно устранить, используя метод интегральной рефлектометрии. Для повышения надежности и быстродействия предлагается одновременное использование методов интегральной рефлектометрии и прямого детектирования в одном устройстве контроля. Приведены расчет параметров и структурная схема предлагаемого устройства.

Введение

В современных распределенных волоконно-оптических информационно-вычислительных сетях большое внимание уделяется надежности их функционирования. Для этого необходимо своевременно обнаруживать и реагировать на нарушения волоконно-оптических линий передачи (ВОЛП), вызванные различными причинами, в т. ч. преднамеренной попыткой отвода сигнала [1]. Поэтому современные волоконно-оптические системы передачи (ВОСП) снабжаются системами мониторинга, которые отслеживают и сигнализируют об изменениях прямых и обратных потерь в оптических волокнах (ОВ). Для оперативного обнаружения нарушений и реагирования используются системы контроля, входящие в состав приемопередающей аппаратуры ВОСП, которые работают непрерывно и круглосуточно. Наиболее важными параметрами систем контроля являются его чувствительность к нарушению ОВ и время реакции на нарушение. Современные алгоритмы контроля построены на методе обнаружения и выделения детерминированных сигналов на фоне случайных помех, разработанном достаточно давно [2]. Общие принципы и алгоритмы работы систем контроля методом прямого детектирования были описаны в работе [3]. Для обнаружения нарушений ОВ помимо метода прямого детектирования существует метод оптической

рефлектометрии [4]. Традиционный метод оптической рефлектометрии во временной области (Optical Time Domain Reflectometer – OTDR) для систем контроля до последнего времени практически не применялся из-за его инерционности. Метод интегральной рефлектометрии позволяет анализировать обратнорассеянный сигнал без его накопления. Вопросу анализа и использования обоих методов в системах контроля нарушений ОВ посвящена настоящая статья.

Анализ методов обнаружения нарушений

Сравним два метода обнаружения нарушений ОВ – метод прямого детектирования и OTDR. Обобщенная структурная схема системы контроля методом прямого детектирования представлена на рис. 1. Контрольный оптический сигнал, сформированный оптическим передатчиком ОПДК, суммируется с помощью WDM (Wavelength Division Multiplexing – спектральное уплотнение каналов) мультиплексора MUX с информационным оптическим сигналом (сигналами), поступающим от оптического передатчика ОПДИ. Информационные и контрольные оптические сигналы передаются на различных рабочих длинах волн. После этого суммарный оптический сигнал через замкнутый оптический переключатель (ОП) передается по ОВ на заданное расстояние и демультиплексируется по длинам волн с помощью WDM демультиплексора DEM.

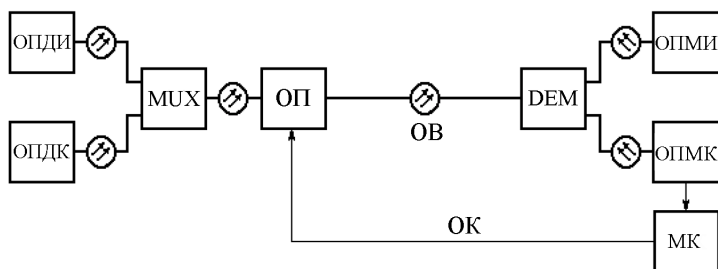


Рис. 1. Структурная схема системы контроля методом прямого детектирования

Информационные оптические сигналы поступают на оптический приемник ОПМИ, а контрольные – на оптический приемник ОПМК, где они преобразуются в электрические сигналы и усиливаются. Контрольный сигнал поступает на микроконтроллер (МК), где происходит его аналого-цифровая обработка (АЦП) и дальнейшая обработка по специальному алгоритму [3]. В случае обнаружения нарушения МК по обратному каналу ОК с помощью ОП отключает передачу оптических сигналов.

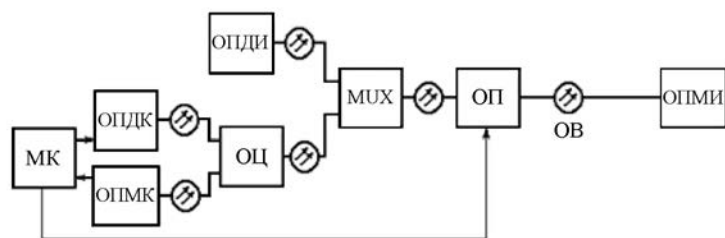


Рис. 2. Структурная схема системы контроля методом оптической рефлектометрии во временной области

Обобщенная структурная схема системы контроля методом оптической рефлектометрии во временной области представлена на рис. 2.

МК формирует периодические зондирующие сигналы, которые поступают на оптический передатчик ОПДК, где преобразуются в оптические сигналы. После этого сигналы через оптический циркулятор (ОЦ) передаются

на вход WDM мультиплексора MUX, где складываются с информационными оптическими сигналами, поступающими от передатчика ОПДИ. Информационные и контрольные оптические сигналы передаются на различных рабочих длинах волн. Суммарный оптический сигнал через оптический переключатель ОП поступает в ОВ. Информационные оптические сигналы поступают на вход приемника ОПМИ, а обратнорассеянное от контрольных импульсов излучение через ОП, MUX и ОЦ попадает на вход приемника ОПМК. Приемник преобразует оптический сигнал в электрический и усиливает его. Обратнорассеянный сигнал поступает на МК, где обрабатывается по специальному алгоритму (формируется рефлектограмма). В случае обнаружения на рефлектограмме локального дефекта МК с помощью ОП отключает передачу оптических сигналов.

OTDR измеряет непосредственно прямые потери на локальном дефекте, вызванном нарушением ОВ, а метод прямого детектирования измеряет изменение коэффициента передачи между оптическими полюсами ВОЛП, по которому делается вывод о появлении локального дефекта. Для метода прямого детектирования обязательно требуется обратный канал, для OTDR такой канал не нужен. Точность измерения методом прямого детектирования зависит от стабильности мощности контрольного сигнала, OTDR сразу измеряет относительную величину потерь и поэтому не зависит от стабильности источника излучения. К единственному недостатку метода оптической рефлектометрии во временной области следует отнести низкий уровень мощности обратнорассеянного излучения и связанную с этим высокую инерционность, обусловленную необходимостью накопления сигнала длительное время. Для устранения этого недостатка, как уже отмечалось, может быть использован метод интегральной рефлектометрии.

Сравнение метода интегральной рефлектометрии и OTDR

Метод интегральной рефлектометрии отличается от обычной OTDR рефлектометрии тем, что длительность зондирующего импульса выбирается большей или равной удвоенному времени распространения излучения в тестируемом волокне [5] и регистрируется обратнорассеянное излучение не с началом зондирующего импульса (передним фронтом), а с его окончанием (задним фронтом) [6]. Энергия зондирующего импульса максимальна, и, соответственно, максимальна мощность обратнорассеянного сигнала, что позволяет сократить время обработки и принятия решения.

Составляющая коэффициента затухания ОВ, обусловленная рэлеевским рассеянием в ОВ, хорошо интерполируется формулой, дБ/км [7]:

$$\alpha_{rel} = K_{rel} \lambda^{-4}, \quad (1)$$

где $K_{rel} = 0,8 \text{ мкм}^4 \text{ дБ/км}$; λ – рабочая длина волны, мкм.

С одной стороны, чем больше значение потерь на рэлеевское рассеяние, тем больше мощность обратнорассеянного излучения. Но при этом необходимо учитывать, что при прохождении сигнала по ОВ мощность излучения падает пропорционально коэффициенту затухания в волокне. Увеличение коэффициента затухания приводит к большему динамическому диапазону, который необходимо обеспечить. В табл. 1 приведены потери на рэлеевское рассеяние, коэффициент затухания и динамический диапазон для длины ОВ 100 км и длин волн 1310, 1550 и 1625 нм. Из таблицы следует, что наименьший динамический диапазон достигается при использовании длин волн 1550 и 1625 нм. Кроме того, прямые потери на локальных дефектах увеличиваются при

увеличении длины волны [8]. Поэтому для рефлектометрии целесообразно использование длин волн на участке С диапазона (от 1530 до 1565 нм) и L-диапазона (от 1565 до 1625 нм).

Таблица 1

Параметры оптических волокон длиной 100 км в зависимости от длины волны

Длина волны λ , нм	Потери на рэлеевское рассеяние α_{rel} , дБ/км	Коэффициент затухания α , дБ/км	Динамический диапазон D , дБ
1310	0,27	0,40	40
1550	0,14	0,25	25
1625	0,11	0,20	20

В ОВ только часть рассеянного излучения канализируется сердцевинной и распространяется вдоль волокна в направлении входного торца. Величину обратнорассеянного излучения можно оценить с помощью коэффициента G – отношения мощности, распространяющейся в ОВ в обратном направлении, к мощности, соответствующей полным потерям, который может быть вычислен по формуле, дБ [8]:

$$G = 10 \lg \left(\frac{\ln(10)}{10} S \alpha_{rel} \Delta x \right), \quad (2)$$

где S – фактор обратного рассеяния, отн. ед.; α_{rel} – потери на рэлеевское рассеяние, дБ/км; Δx – длина участка ОВ, с которого собирается обратное рассеяние, км.

Для одномодового ОВ фактор обратного рассеяния вычисляется по формуле [8], отн. ед.:

$$S = \left(\frac{NA}{n} \right)^2 / 4,55, \quad (3)$$

где NA – числовая апертура волокна (для SMF-28 на $\lambda = 1550$ нм $NA = 0,128$); n – показатель преломления сердцевинной ОВ (для SMF-28 на $\lambda = 1550$ нм $n = 1,4504$).

Длина участка ОВ, с которого собирается обратное рассеяние и длительность зондирующего импульса взаимосвязаны формулой [4], км:

$$\Delta x = \frac{\tau_n c}{2n}, \quad (4)$$

где c – скорость света в вакууме, км/с.

Как показывает практика, использование в расчетах формулы (4) для вычисления коэффициента обратного рэлеевского рассеяния возможно лишь при небольших Δx и τ_n , не превышающих типовых значений для OTDR рефлектометрии. Как правило, в OTDR применяются импульсы длительностью не более 20 мкс [9], что соответствует длине участка ОВ, с которого собирается обратное рассеяние в 2 км. Как ранее отмечалось, в интегрирующих рефлектометрах длительность импульса соответствует удвоенной длине линии. При таких значениях длительностей зондирующих импульсов длина участка ОВ, с которого собирается обратное рассеяние, будет равна эффективной длине волокна, расчет которой ведется по формуле [10], км:

$$L_{eff} = \alpha^{-1} (1 - e^{-\alpha L}), \quad (5)$$

где α – коэффициент затухания, км^{-1} ; L – физическая длина ОВ, км.

График зависимости эффективной длины ОВ от физической для различных длин волн приведен на рис. 3 (см. также цветную вкладку) [11].

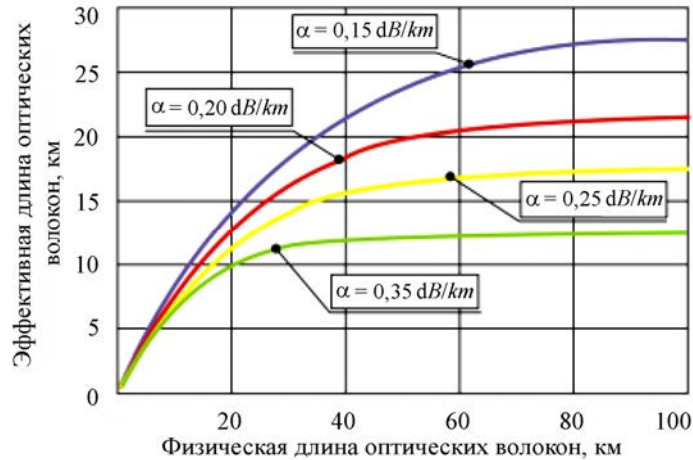


Рис. 3. График зависимости эффективной длины оптических волокон от их физической длины

Таким образом, формула для вычисления коэффициента обратного рэлеевского рассеяния для метода интегральной рефлектометрии примет вид, дБ:

$$G = -13 + 10 \lg \left[(NA/n)^2 \alpha_{rel} L_{eff} \right]. \quad (6)$$

Результаты расчета длительности зондирующего импульса $\tau_{и}$, эффективной длины ОВ L_{eff} , коэффициента обратного рассеяния G при интегральной рефлектометрии для длины волны 1550 нм в зависимости от физической длины ОВ L приведены в табл. 2.

Таблица 2

Длительность импульса, эффективная длина оптических волокон, коэффициент обратного рассеяния в зависимости от физической длины оптических волокон для длины волны 1550 нм

Физическая длина оптических волокон L , км	Длительность импульса $t_{и}$, мкс	Эффективная длина оптических волокон L_{eff} , км	Коэффициент G , дБ
0,1	1	0,1	-52,64
10	100	7,6	-33,77
50	500	16,4	-30,43
100	1000	17,3	-30,20

Для OTDR длительность зондирующего импульса выбирается не в зависимости от физической длины линии, а в зависимости от необходимой точности обнаружения места нарушения. Чем меньше длительность зондирующего импульса, тем выше точность. Как при физической длине

ОВ $L = 1$ км, так и при $L = 100$ км при одинаковой точности обнаружения места нарушения длительность зондирующего импульса будет одинакова и, соответственно, значение коэффициента G будет одинаково $-52,64$ дБ.

Из табл. 2 видно, что при физической длине линии 100 км использование метода интегральной рефлектометрии дает значительное увеличение ($22,44$ дБ) коэффициента обратного рэлеевского рассеяния, по сравнению с OTDR при длительности импульса 1 мкс, что приводит к значительному увеличению мощности обратнорассеянного сигнала.

Расчет мощности на ОПМК производится по формуле [9], дБм:

$$W_r = W_0 - 2\eta - 2L\alpha + G, \quad (7)$$

где W_0 – мощность излучения источника зондирующих импульсов, дБм; η – потери при прохождении света через пассивные оптические компоненты, дБ.

Оценки максимальной и минимальной мощностей сигнала на входном полюсе ОПМК для метода интегральной рефлектометрии для разных мощностей зондирующих импульсов W_0 , коэффициента обратного рассеяния $G = -30,2$ дБ приведены в табл. 3 для потерь $\eta = 1,0$ дБ, длины ОВ $L = 100$ км и коэффициента затухания $\alpha = 0,25$ дБ/км.

Таблица 3

Мощность на входе ОПМК при разной мощности зондирующего импульса

Мощность W_0 , дБм (мВт)	Максимальная мощность $W_{r_{\max}}$, дБм	Минимальная мощность $W_{r_{\min}}$, дБм
13,0 (20)	- 19,2	- 69,2
16,0 (40)	- 16,2	- 66,2
19,0 (80)	- 13,2	- 63,2
21,7 (150)	- 10,5	- 60,5
23,0 (200)	- 9,2	- 59,2

Значения максимальной и минимальной мощностей обратнорассеянного сигнала для OTDR будут на $22,44$ дБ меньше, при тех же значениях мощностей зондирующего импульса.

Важно, чтобы мощность, попадающая на оптический приемник, превышала его порог чувствительности $P_{\text{пр}}$. При типичном значении пороговой чувствительности лавинного фотодиода

10^{-14} Вт/ $\sqrt{\text{Гц}}$ и ширине полосы 1 МГц получаем, что $P_{\text{пр}} = -80$ дБм [9]. Из табл. 3 видно, что даже при минимальной мощности зондирующего импульса указанное условие выполняется. Что касается OTDR, то даже при максимальной мощности зондирующего импульса порог чувствительности фотоприемника не превышает (минус $81,64$ дБм).

На рис. 4 (см. также цветную вкладку) приведено сопоставление теоретических и экспериментальных данных зависимости мощности обратнорассеянного сигнала от длительности зондирующего импульса для одномодового волокна Corning SMF-28 длиной 50 км с коэффициентом затухания $\alpha = 0,18$ дБ/км на длине волны 1550 нм. Мощность зондирующего импульса 13 дБм, потери на пассивных компонентах $2,1$ дБ. На оси абсцисс находятся значения длительности зондирующего импульса τ_n , мкс, а на оси ординат – значения мощности обратнорассеянного сигнала $W_{r_{\max}}$, дБм. Из рис. 4 видно, что начиная примерно с длительности импульса 70 мкс экспери-

ментальные и теоретические значения начинают расходиться, что свидетельствует о влиянии на мощность обратнорассеянного сигнала нелинейных эффектов, увеличивающихся с ростом эффективной длины ОВ [10], которые накладывают ограничение на мощность зондирующего импульса.

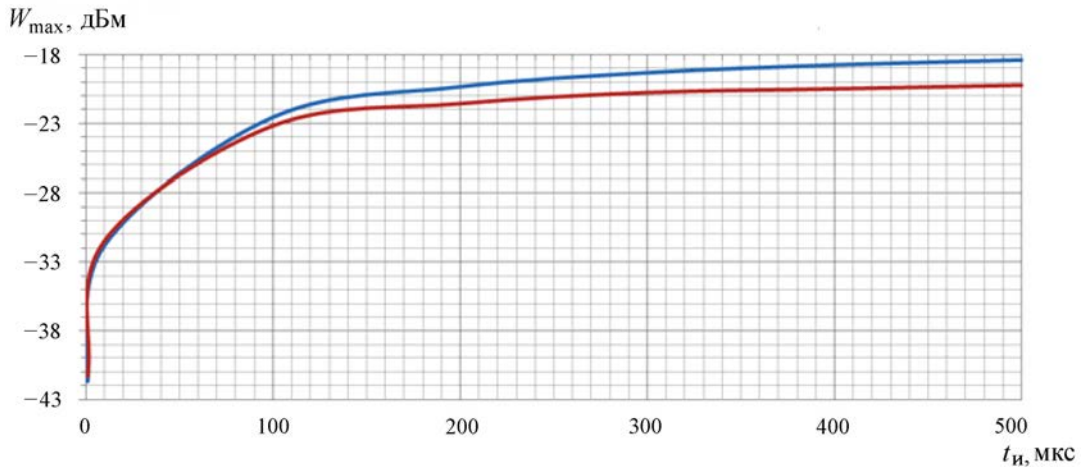


Рис. 4. Зависимость мощности обратнорассеянного сигнала от длительности зондирующего импульса:
 — теоретическая мощность обратнорассеянного излучения P_T ,
 — экспериментальное значение мощности обратнорассеянного излучения P_O

Устройство контроля методами интегральной рефлектометрии и прямого детектирования

Как известно [3], вероятный диапазон времени вывода составляет от 0,5 с (быстрые нарушения) до $3 \cdot 10^3$ с (медленные нарушения). Обнаружение попытки съема и реакция контроллера защиты на нарушение должны происходить на стадии вывода за время не более длительности вывода оптического излучения. При быстром внесении дополнительных прямых потерь величиной A_d метод интегральной рефлектометрии не обеспечивает необходимого времени реакции контроллера на нарушение, реализуемое методом прямого детектирования. Поэтому обнаружение быстрых нарушений производится с помощью метода прямого детектирования.

На основе вышеизложенного была разработана структурная схема комплексного устройства контроля методами интегральной рефлектометрии и прямого детектирования (рис. 5). Микроконтроллер (МК) формирует периодические зондирующие сигналы длительностью, равной удвоенному времени распространения света в исследуемом волокне, которые поступают на оптический передатчик ОПДК, где преобразуются в оптические сигналы. После этого контрольные оптические сигналы через оптический циркулятор (ОЦ) передаются на вход WDM мультиплексора MUX, где складываются с информационными оптическими сигналами. Информационные $\lambda_{\text{и}}$ и контрольные $\lambda_{\text{к}}$ оптические сигналы передаются на различных рабочих длинах волн.

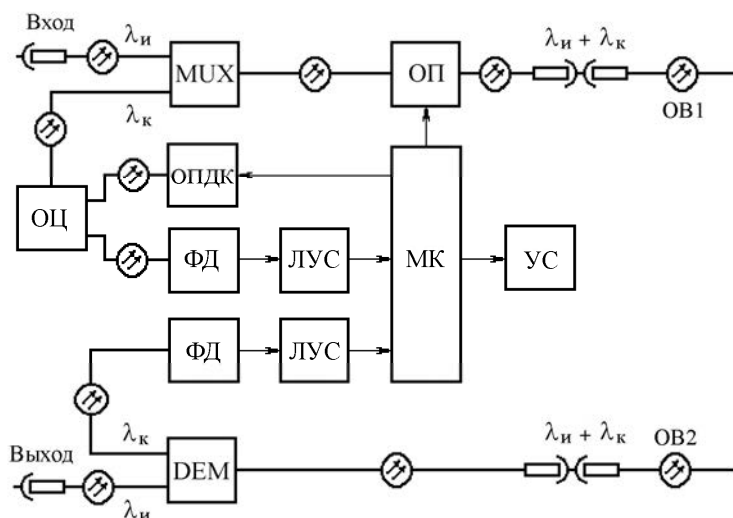


Рис. 5. Структурная схема устройства контроля

Суммарный оптический сигнал через ОП поступает в ОВ1. Отраженное и обратнорассеянное излучение с ВОЛП, через ОП, MUX, ОЦ направляется на фотодиод (ФД). После преобразования в фототок, усиления и логарифмирования сигнал поступает на вход МК, где преобразуется в цифровую форму и обрабатывается по специальной программе (формируется рефлектограмма). Кроме того, излучение, которое распространяется по ВОЛП по обратному каналу через ОВ2, попадает на демультиплексор (ДЕМ), который выделяет излучение с контрольной длиной волны λ_k . Сигнал принимается ФД, усиливается логарифмическим усилителем (ЛУС) и поступает на вход МК, где преобразуется в цифровую форму и обрабатывается по специальной программе. В случае появления на рефлектограмме, сформированной МК, локального дефекта с потерями большими установленного порога, или обнаружения нарушения по обратному каналу, МК формирует сигнал отключения ОП и включает устройство сигнализации (УС).

В методе интегральной рефлектометрии за счет использования зондирующего импульса с длительностью, полностью заполняющей ВОЛП, удастся увеличить коэффициент рэлеевского рассеяния, что, в свою очередь, приводит к увеличению мощности обратнорассеянного излучения до величины, обеспечивающей приемлемое отношение сигнал/шум, при меньшем времени на обработку, чем при традиционной рефлектометрии во временной области.

За счет использования логарифмического усилителя сокращается динамический диапазон входных сигналов МК. Кроме того, величина изменения сигнала от дополнительных потерь постоянна во всем динамическом диапазоне входных сигналов. В устройстве контролируется изменение наклона обратнорассеянного сигнала, который не зависит от изменений мощности оптического передатчика от внутренних и внешних воздействий. Поэтому можно устанавливать более низкий порог обнаружения, а также увеличивать длительность времени наблюдения. На рис. 6 приведен пример рефлектограммы обнаружения локального дефекта методом интегральной рефлектометрии.

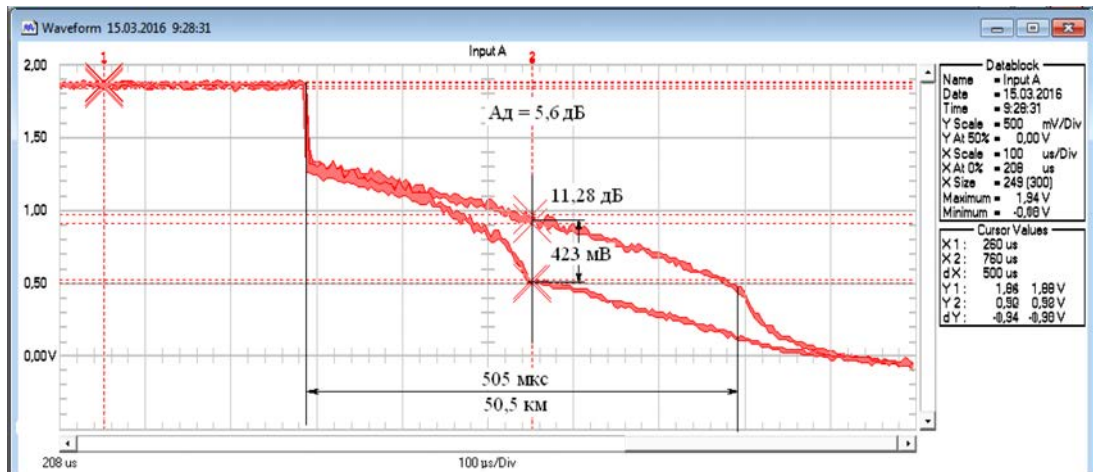


Рис. 6. Рефлектограмма обнаружения локального дефекта

Заключение

Метод рефлектометрии во временной области имеет преимущества перед методом прямого детектирования: прямое измерение потерь на локальном дефекте, отсутствие обратного канала, более высокая точность и время наблюдения. Недостаток OTDR – инерционность, которая устраняется увеличением длительности зондирующего импульса до полного заполнения длины волокна (интегральная рефлектометрия).

Предложен комплексный метод контроля, при котором быстрые нарушения обнаруживаются методом прямого детектирования, медленные – методом интегральной рефлектометрии.

Ближайшим зарубежным аналогом может служить устройство комплексного контроля [12], в котором предлагается вести обнаружение нарушения путем сравнения отношения мощностей на двух различных длинах волн с порогом 0,3–0,6 дБ. Предлагаемое в статье устройство способно контролировать величину дополнительных прямых потерь с порогом 0,01–0,03 дБ (без учета спектрального разделения сигналов), что значительно превосходит зарубежный аналог.

Список литературы

1. Securing Fiber Optic Communications against Optical Tapping Methods // www.oysteroptics.com.
2. Шестов Н. С. Выделение оптических сигналов на фоне случайных помех. М.: Советское радио, 1967.
3. Нарышкина О. Н., Овечкин С. И., Шубин В. В. Алгоритм и программа обнаружения нарушений при передаче информации по оптическому волокну // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов. 2014. Вып. 4. С. 65–72.

4. Свинцов А. Г. Рефлектометрические методы измерения параметров ВОЛС // Фотон-экспресс. 2006. № 6. С. 39–55.
5. Пат. № 44389, РФ, МПК G01N. Оптический интегрирующий рефлектометр / С. Ф. Глаголев, В. Б. Архангельский, А. В. Семин, К. В. Марченко // Бюл. № 7. 2004.
6. Архангельский В. Б., Глаголев С. Ф., Марченко К. В. Интегрирующий рефлектометр // Фотон-экспресс. 2005. № 3. С. 31–33.
7. Убайдуллаев Р. Р. Волоконно-оптические сети. М.: Эко-Трендз, 2001.
8. Anderson D. R., Johnson L., Bell F.G. Troubleshooting Optical-Fiber Networks. Understanding and Using Your Optical Time-Domain Reflectometer. San-Diego-London: Elsevier Academic Press, 2004.
9. Листвин А. В., Листвин В. Н. Рефлектометрия оптических волокон. М.: ЛЕСАРпт, 2005.
10. Агравал Г. Нелинейная волоконная оптика. М.: Мир, 1996.
11. Беспрозванных В. Г., Первадчук В. П. Нелинейные эффекты в волоконной оптике. Пермь: ПНИПУ, 2011.
12. EP1564913A2, H04B 10/08. Active fiber loss monitor and method / Alan Frank // Bulletin 2005/33. 2005.

Control of Fiber-Optic Link Damages in Distributed Information-Computer Networks Using the Integral Reflectometry and Direct Detection Methods

K. I. Balashov, V. V. Shubin

Results of the development of the way of controlling damages in a fiber-optic link of distributed information-computer network using the integral reflectometry and direct detection methods are presented. It is shown that the optical reflectometry method limitation, in time domain, consists in a weak waveform of backward scattering can be removed by using the integral reflectometry method. To improve reliability and increase the speed of operations, it is suggested to use the integral reflectometry method in combination with the direct detection method within one controlling device. The calculation of parameters and structural diagram of the device are presented.

УДК 519.6

Сравнение двух методов распараллеливания прогонки на гибридных ЭВМ с графическими ускорителями

А. А. Федоров, А. Н. Быков

Описаны параллельно-конвейерный метод (ПКМ) и метод Яненко решения СЛАУ с трехдиагональной матрицей на параллельных ЭВМ с графическими ускорителями, а также особенности реализации методов как на параллельных ЭВМ без ускорителей, так и на гибридных ЭВМ. Оценивается арифметическая сложность метода Яненко и приводятся результаты численных экспериментов по исследованию масштабируемости методов.

Введение

Эйлерово-лагранжева методика РАЗЕС-КП предназначена для численного решения трехмерных нестационарных задач газовой динамики с учетом теплопроводности [1]. Конечно-разностная аппроксимация дифференциальных уравнений, используемая в данной методике, сводит задачу нахождения численного решения к необходимости решения систем линейных алгебраических уравнений (СЛАУ) специального (трехдиагонального) вида. Для нахождения решения таких СЛАУ используется метод прогонки. Ранее для работы на многопроцессорных ЭВМ с распределенной памятью была разработана версия ПКМ [2], одной из особенностей которой был автоматический выбор числа порций линий точек для такта конвейера.

Появление параллельных ЭВМ с графическими ускорителями (GPU) сделало актуальной задачу реализации методов решения СЛАУ с трехдиагональной матрицей с помощью прогонки на такой архитектуре. Особенности архитектуры заставили пересмотреть подходы к распараллеливанию прогонки. В ПКМ предполагается распараллеливание не одной прогонки, а множества – процессор выполняет работу для части (порции) линий точек, передает работу над этой частью другому процессору и приступает к работе над следующей порцией. В GPU число параллельно исполняющихся нитей, каждая из которых может обрабатывать одну линию точек, очень велико и для многих задач превышает число линий. Поэтому авторы обратили внимание на другой подход к распараллеливанию прогонки, основанный на идее редукции, который ориентирован на распараллеливании прогонки одной линии точек.

Известно множество статей на данную тему. Среди них можно выделить следующие: в работах [3] и [4] предложены решатели, использующие сочетание параллельной циклической редукции (PCR) [5] и алгоритма Томаса [6] с механизмами принятия решений для переключения с PCR на алгоритм Томаса с целью балансировки параллелизма и вычислительной сложности. NVIDIA выпустила трехдиагональный решатель, используя сочетание циклической редукции (CR) [5] и алгоритмы PCR в библиотеке CUSPARSE [7]. В работах [8–10] предложены трехдиагональные решатели для GPU, использующих CR, в [11, 12] – решатель на основе PCR, в [13] описана реализация алгоритма Томаса, в [14] введено сочетание алгоритмов PCR и Томаса, в работах [15, 16] предложен гибридный метод, включающий в себя алгоритм Томаса, CR, PCR и метод рекурсивного удвоения (RD) [17], в [18] предложен вычислительно устойчивый масштабируемый решатель на основе алгоритма SPIKE [19, 20].

В России известен метод, предложенный Н. Н. Яненко [21], позволяющий редуцировать исходную систему с большим числом неизвестных к системе с числом неизвестных, равным числу процессоров. Редуцированная система, состоящая из гранично-процессорных точек, решается методом прогонки. Для того чтобы распараллелить решения этой системы, исследуются такие методы, как встречной прогонки и параллельно-циклической редукции.

Параллельно-конвейерный метод

В методике РАЗЕС-КП первоначально для решения СЛАУ с трехдиагональной матрицей на параллельных ЭВМ с распределенной памятью был реализован ПКМ. Основная его идея состоит в том, что процессор, выполнив обработку находящихся на нем точек линии, передает данные следующему (на прямом ходу) или предыдущему (на обратном ходу) процессору, чтобы тот мог начать работу, а сам в это время начинает обрабатывать следующую линию точек, т. е. получается конвейерный способ обработки информации. Если исключить время разгона и торможения конвейера, то все остальное время в счете задействованы все процессоры.

Следует отметить, что число порций, определяющее число тактов конвейера, подбирается автоматически во время решения задачи на ЭВМ, исходя из времени счета на предыдущем временном шаге задачи. В случае когда число порций становится равно единице, ПКМ вырождается в классический метод прогонки, когда в один момент времени работает только один процессор. Подробнее этот метод описан в работе [2].

Особенности реализации параллельно-конвейерного метода на гибридных ЭВМ

При реализации данного метода на GPU выяснилось, что число порций, необходимых для достижения наименьшего времени счета, равно единице. Это связано с тем, что архитектура GPU подразумевает наличие большого числа одновременно работающих потоков. Многие GPU поддерживают до 2048 активных нитей на мультипроцессор и число мультипроцессоров около 15, благодаря этому можно одновременно запустить на выполнение более 30000 нитей. И этого количества достаточно для того, чтобы каждая прогонка обесценивалась в отдельном потоке. Следовательно, разбиение на порции не будет иметь смысла. В случае же трехмерной задачи с числом

точек $100 \times 100 \times 100$ при решении прогонки вдоль одного направления необходимо одновременно рассчитывать $100 \times 100 = 10000$ прогонок, этого количества также недостаточно, чтобы полностью загрузить GPU.

Таким образом, на параллельных ЭВМ с графическими ускорителями ПКМ вырождается в классический метод прогонки. Осознание данного факта вынудило обратить внимание на другие методы решения СЛАУ с трехдиагональными матрицами в параллельном режиме, в частности, на метод, предложенный Н. Н. Яненко [21].

Метод Яненко

Будем решать систему линейных уравнений с трехдиагональной матрицей

$$a_i y_{i-1} + b_i y_i + c_i y_{i+1} = d_i, \quad b_i \neq 0, \quad i = 1, 2, \dots, N-1, \quad b_0 y_0 + c_0 y_1 = d_0, \quad a_N y_{N-1} + b_N y_N = d_N. \quad (1)$$

Для простоты пусть на каждом процессоре будет одинаковое количество точек $m = K / M$, где K – число неизвестных (в нашем случае $K = N + 1$), M – число процессоров, индексация будет глобальная. Таким образом, на отдельном процессоре с номером j будет находиться лишь часть уравнений системы (1) с номерами от $(j-1)m + 1$ до jm , где j – номер процессора. Обозначим y_{jm} через z_j , $j = 0, \dots, M$ и будем искать решения системы (1) в виде

$$y_{(j-1)m+i} = z_{j-1} u_i + z_j v_i + w_i, \quad i = 0, \dots, m, \quad j = 1, \dots, M, \quad (2)$$

где u, v, w есть решения следующих систем уравнений:

$$\begin{aligned} a_i u_{i-1} + b_i u_i + c_i u_{i+1} &= 0, \\ u_{(j-1)m} &= 1, \quad u_{jm} = 0; \\ a_i v_{i-1} + b_i v_i + c_i v_{i+1} &= 0, \\ v_{(j-1)m} &= 0, \quad v_{jm} = 1; \\ a_i w_{i-1} + b_i w_i + c_i w_{i+1} &= d_i, \\ w_{(j-1)m} &= 0, \quad w_{jm} = 0; \\ i &= (j-1)m+1, \dots, jm-1, \\ j &= 1, \dots, M. \end{aligned} \quad (3)$$

Решения этих трех систем можно найти методом прогонки, причем независимо на каждом процессоре. Будем называть их предрешениями, а этот этап решения задачи – этапом нахождения предрешений.

В уравнения с номерами jm из системы (1): $a_{jm} y_{jm-1} + b_{jm} y_{jm} + c_{jm} y_{jm+1} = d_{jm}$, $j = 0, \dots, M$, подставляем вместо y комбинации (2). Таким образом, получаем систему трехточечных уравнений для нахождения z_j , имеющую следующий вид:

$$\begin{aligned} A_j z_{j-1} + B_j z_j + C_j z_{j+1} &= D_j, \quad j=1, \dots, M-1, \\ B_0 z_0 + C_0 z_1 &= D_0, \quad A_M z_{M-1} + B_M z_M = D_M \end{aligned} \quad (4)$$

с коэффициентами

$$\begin{aligned} B_0 &= b_0 + c_0 u_1, & C_0 &= c_0 v_1, & D_0 &= d_0 - c_0 w_1, & A_j &= a_{jm} u_{jm-1}, & B_j &= a_{jm} v_{jm-1} + b_{jm} + c_{jm} u_{jm+1}, \\ C_j &= c_{jm} v_{jm+1}, & D_j &= d_{jm} - a_{jm} w_{jm-1} - c_{jm} w_{jm+1}, & & & & & j &= 1, \dots, M-1, \\ A_M &= a_{Mm} u_{Mm-1}, & B_M &= b_{Mm} + a_{Mm} v_{Mm-1}, & D_M &= d_{Mm} - a_{Mm} w_{Mm-1}. \end{aligned}$$

Назовем этот этап этапом нахождения гранично-процессорных решений. Размерность этой системы уравнений равна количеству процессоров, что существенно меньше количества точек задачи.

На последнем этапе восстанавливаем окончательное решение по формуле (2).

Итак, метод Яненко содержит три этапа:

- 1) нахождение предрешений,
- 2) нахождение гранично-процессорных решений,
- 3) восстановление решения.

Первый и третий этапы выполняются независимо на каждом устройстве (универсальном процессоре или ускорителе), а второй требует коммуникаций между MPI-процессами. Таким образом, эффективность распараллеливания метода Яненко напрямую зависит от эффективности распараллеливания этого этапа.

Возникает вопрос, каким методом решать систему, состоящую из гранично-процессорных точек? В качестве возможных рассматривались методы встречной прогонки [22] и параллельно-циклической редукции [5]. Рассмотрим их.

Формулы для метода встречной прогонки выглядят следующим образом:

$$\begin{aligned} \alpha_{1,0} &= -c_0/b_0, & \beta_{1,0} &= d_0/b_0, & \alpha_{1,i} &= -c_i/(b_i + a_i \alpha_{1,i-1}), \\ \beta_{1,i} &= (d_i - a_i \beta_{1,i-1})/(b_i + a_i \alpha_{1,i-1}), & & & i &= 1, \dots, k, \\ \alpha_{2,M} &= -a_M/b_M, & \beta_{2,M} &= d_M/b_M, & \alpha_{2,i} &= -a_i/(b_i + c_i \alpha_{2,i+1}), \\ \beta_{2,i} &= (d_i - c_i \beta_{2,i+1})/(b_i + c_i \alpha_{2,i+1}), & & & i &= M-1, \dots, k+1, \\ y_k &= (\beta_{1,k} + \alpha_{1,k} \beta_{2,k+1})/(1 - \alpha_{1,k} \alpha_{2,k+1}), & y_i &= \alpha_{1,i} y_{i+1} + \beta_{1,i}, & & i = k-1, \dots, 0, \\ y_i &= \alpha_{2,i} y_{i-1} + \beta_{2,i}, & & & i &= k+1, \dots, M. \end{aligned} \quad (5)$$

Особенность этого метода заключается в том, что во время его работы в параллельном режиме загружены одновременно два процессора (за исключением этапа разрешения встречной прогонки, когда работает только один процессор) в отличие от классического метода прогонки [22], когда одновременно может работать только один процессор. Это является очевидным преимуществом для повышения эффективности распараллеливания метода Яненко.

Теперь рассмотрим метод параллельно-циклической редукции. Формулы [5] преобразования коэффициентов матрицы (4) на первом шаге редукции (с учетом введенных обозначений) принимают следующий вид:

$$\begin{aligned}
 B_0^1 &= -\frac{C_0}{B_1} A_1 + B_0, & C_0^1 &= -\frac{C_0}{B_1} C_1, & D_0^1 &= -\frac{C_0}{B_1} D_1 + D_0, & C_i^1 &= -\frac{C_i}{B_{i+1}} C_{i+1}, & A_i^1 &= -\frac{A_i}{B_{i-1}} A_{i-1}, \\
 D_i^1 &= -\frac{A_i}{B_{i-1}} D_{i-1} - \frac{C_i}{B_{i+1}} D_{i+1} + D_i, & B_i^1 &= -\frac{A_i}{B_{i-1}} C_{i-1} - \frac{C_i}{B_{i+1}} A_{i+1} + B_i, & & & & & & i = 1, \dots, M-1, \\
 A_M^1 &= -\frac{A_M}{B_{M-1}} A_{M-1}, & B_M^1 &= -\frac{A_M}{B_{M-1}} C_{M-1} + B_M, & D_M^1 &= -\frac{A_M}{B_{M-1}} D_{M-1} + D_M.
 \end{aligned} \tag{6}$$

После такого преобразования мы будем иметь две системы трехточечных уравнений, которые можно решать независимо на разных процессорах: одна из них – для четных неизвестных, другая – для нечетных.

На следующем этапе данного метода, применяя к двум получившимся системам уравнения (6), мы уже будем иметь четыре системы трехточечных уравнений, которые можно решать независимо. Этот процесс продолжается до тех пор, пока в каждой из получившихся систем не останется по одному уравнению с одним неизвестным, из которого мы и найдем решение системы.

Особенность метода параллельно-циклической редукции заключается в том, что во время работы в параллельном режиме одновременно загружены почти все процессоры (за исключением тех, где уже найдено решение системы уравнений).

Особенности реализации метода Яненко на гибридных ЭВМ

Необходимо учитывать разницу в архитектурах традиционных процессоров (CPU) и графических ускорителей (GPU). Программу необходимо разбивать на части, оптимальные для решения на CPU или GPU. Следует отметить, что при решении системы (1) предполагается, что коэффициенты системы уже находятся на GPU.

В данной реализации метода Яненко на GPU проводились нахождение предрешений по формулам (3) и восстановление решений по формулам (2). Программа для нахождения предрешений работает в двух асинхронных потоках [23], так как для нахождения предрешений удалось реализовать метод встречной прогонки. Таким образом, этап нахождения предрешений может работать почти в 2 раза быстрее за счет использования асинхронных потоков GPU.

Оценим объем копирования данных между CPU и GPU для двумерной задачи с числом точек $m_1 \times m_2$ и трехмерной задачи с числом точек $n_1 \times n_2 \times n_3$ с декомпозицией по второму направлению. Объем пересылаемых данных будет рассчитываться следующим образом:

1. Для нахождения коэффициентов системы (4) нам понадобится 6 предрешений $(u_{jm-1}, v_{jm-1}, w_{jm-1}, u_{(j-1)m+1}, v_{(j-1)m+1}, w_{(j-1)m+1})$, соответственно для двумерного случая мы будем иметь $6m_2$, а для трехмерного – $6n_2n_3$ пересылаемых значений.

2. Для восстановления решения по формулам (2) необходимо присутствие на GPU решений на границе процессоров (U_{j-1}, U_j) , следовательно, для двумерного случая число пересылок составляет $2m_2$, а для трехмерного – $2n_2n_3$ значений.

В итоге, общее число пересылок для двумерной задачи будет составлять $6m_2 + 2m_2 = 8m_2$, а для трехмерной – $6n_2n_3 + 2n_2n_3 = 8n_2n_3$ значений.

Таким образом, используя графические ускорители, удалось редуцировать систему (1) к системе (4), при этом уменьшив число уравнений до числа MPI-процессов, что, как правило, существенно меньше числа уравнений исходной системы.

Вычисление арифметической сложности метода прогонки

Для того чтобы оценить, насколько хорошо метод Яненко с различными методами прогонки на втором этапе будет работать в параллельном режиме, вычислим количество операций, которые нужно сделать при нахождении решений системы (1) методом Яненко.

В методе Яненко число арифметических операций складывается как сумма операций на трех этапах метода, описанных ранее. Соответственно, искомое число есть $S = s_1 + s_{2,1} + s_{2,2} + s_3$, где s_1 – число операций на этапе нахождения предрешений; $s_{2,1}$ – число операций в расчете коэффициентов матрицы системы для нахождения гранично-процессорных решений; $s_{2,2}$ – число операций в методе прогонки на этом этапе; s_3 – число операций при восстановлении решения исходной системы.

Напомним, что число арифметических операций в классическом методе прогонке составляет $8K-7$, где K – число неизвестных в системе (1) [24].

Теперь вычислим число арифметических операций, которые нужно выполнить в методе Яненко при условии использования классического метода прогонки на втором этапе.

Сначала заметим, что если решать системы (3) методом прогонки, не учитывая особенностей этих систем, то мы получим число арифметических операций $s'_1 = 3(8K - 7) = 24K - 21$.

Покажем, как можно упростить нахождение предрешений. Обозначим прогоночные коэффициенты первой системы (относительно u) через $\alpha_{1,i}, \beta_{1,i}$, второй системы (относительно v) – через $\alpha_{2,i}, \beta_{2,i}$, третьей системы (относительно w) – через $\alpha_{3,i}, \beta_{3,i}$.

Заметим, что все коэффициенты $\alpha_{1,i}; \alpha_{2,i}; \alpha_{3,i}$ равны между собой, поскольку $u_{(j-1)m}$ не зависит от $u_{(j-1)m+1}$, $v_{(j-1)m}$ не зависит от $v_{(j-1)m+1}$, а $w_{(j-1)m}$ не зависит от $w_{(j-1)m+1}$. Тогда $\alpha_{1,i} = \alpha_{2,i} = \alpha_{3,i} = \alpha_i$. Также заметим, что $\beta_{2,i} = 0$. Покажем это методом индукции. Сначала вычислим коэффициент на левой границе задачи

$$\beta_{2,(j-1)m+1} = \frac{d_{(j-1)m+1} - a_i \beta_{2,(j-1)m}}{b_{(j-1)m+1} + a_i \alpha_{(j-1)m}} = \frac{0 - a_i v_{(j-1)m}}{b_{(j-1)m+1} + a_i \alpha_{(j-1)m}} = \frac{-a_i 0}{b_{(j-1)m+1} + a_i \alpha_{(j-1)m}} = 0.$$

Пусть теперь $\beta_{2,i} = 0$, тогда найдем значение $\beta_{2,i+1}$

$$\beta_{2,i+1} = \frac{d_{i+1} - a_{i+1} \beta_{2,i}}{b_{i+1} + a_{i+1} \alpha_i} = \frac{0 - a_i 0}{b_{i+1} + a_{i+1} \alpha_i} = 0, \quad i = (j-1)m+1, \dots, jm-2.$$

Используя полученные выше утверждения, формулы нахождения предрешений будут выглядеть следующим образом:

$$\alpha_i = -\frac{c_i}{b_i + a_i \alpha_{i-1}}, \quad \beta_{1,i} = \frac{d_i - a_i \beta_{1,i-1}}{b_i + a_i \alpha_{i-1}} = \frac{-a_i \beta_{1,i-1}}{b_i + a_i \alpha_{i-1}}, \quad \beta_{2,i} = 0, \quad \beta_{3,i} = \frac{d_i - a_i \beta_{3,i-1}}{b_i + a_i \alpha_{i-1}}.$$

При этом предreshения будут выглядеть следующим образом:

$$u_i = \alpha_i u_{i+1} + \beta_{1,i}, \quad v_i = \alpha_i v_{i+1}, \quad w_i = \alpha_i w_{i+1} + \beta_{3,i}, \quad i = (j-1)m+1, \dots, jm-1, \quad j = 0, \dots, M.$$

Таким образом, для нахождения прогоночных коэффициентов необходимое число операций равно $s_{1,1} = (2+1+2+0+3)(m-2) = 8(m-2)$, а для обратного хода прогонки — $s_{1,2} = (2+1+2)(m-2) = 5(m-2)$. Для всего этапа нахождения предreshений требуется $s_1 = s_{1,1} + s_{1,2} = 8(m-2) + 5(m-2) = 13(m-2)$, что гораздо меньше, чем $s'_1 = 24(m+1) - 21 = 24m + 3$. То есть, учитывая структуру систем уравнений, нам удалось уменьшить число арифметических операций почти в 2 раза, по сравнению с применением обычного метода прогонки к решению трех систем уравнений. В итоге, число операций на всех этапах в методе Яненко выглядит следующим образом (из (4) число процессоров равно $M+1$):

$$\begin{aligned} s_1 &= 13(m-2), \\ s_{2,1} &= 5+10(M-1)+5=10M, \quad s_{2,2} = 8(M+1)-7=8M+1, \\ s_3 &= 5(m-2), \\ S &= 13(m-2)+18M+1+5(m-2)=18(m-2)+18M+1. \end{aligned}$$

В случае когда число процессоров равно 1 ($M=1, m=K$), то $S=18(K-2)+18+1=18K-17$ для системы (1). Видно, что при работе на одном процессоре метод Яненко будет проигрывать классическому методу прогонки, в котором $S=8K-7$.

Теперь попробуем оценить арифметическую сложность алгоритмов, которые мы планируем применить на втором этапе методе Яненко. Получаемые нами в дальнейшем оценки будут составлять слагаемое $s_{2,2}$ в вышеприведенной формуле арифметической сложности метода Яненко. Из (4) число уравнений в системе на этом этапе равно $M+1$.

Из (5) видно, что число арифметических операций для метода встречной прогонки равно $2+6k+2+6(M-k-1)+4+2(k)+2(M-k)=8M+2$, что немногим больше числа операций в классическом методе прогонки.

Теперь рассмотрим метод параллельно-циклической редукции. Из (6) видно, что на этапе преобразования коэффициентов матрицы для гранично-процессорных точек число операций будет выражаться величиной $S_{2,1} = 6+(2+1+4+1+4)(M-1)+6=6+12M-12+6=12M$. После таких преобразований мы получаем две независимых системы трехточечных уравнений, которые можно решать независимо на разных процессорах (с четными и нечетными номерами, соответственно). Формулы преобразований будут теми же, но изменится индексация. Для системы, в которой на четных местах стоят ненулевые коэффициенты, диапазон изменения индекса следующий: $i=0, 2, \dots, 2\lfloor M/2 \rfloor$, а для системы, в которой на нечетных местах стоят ненулевые коэффициенты, — $i=1, 3, \dots, 2\lfloor (M-1)/2 \rfloor + 1$. В этом случае число арифметических операций

$$S_{2,2} = 12[M/2] + 12[(M-1)/2] = 12\left(\left(M/2 - \{M/2\}\right) + \left((M-1)/2 - \{(M-1)/2\}\right)\right) = \\ = 12\left(\left(M/2 + (M-1)/2\right) - \left(\{M/2\} + \{(M-1)/2\}\right)\right) = 12((M-0,5) - 0,5) = 12(M-1),$$

где $[M]$ – целая часть числа M , а $\{M\}$ – дробная часть числа M .

На следующем этапе мы уже будем иметь четыре системы трехточечных уравнений, которые можно решать независимо. Аналогично вышеописанному

$$S_{2,3} = 12[M/4] + 12[(M-1)/4] + 12[(M-2)/4] + 12[(M-3)/4] = \\ = 12(M/4 + (M-1)/4 + (M-2)/4 + (M-3)/4) - 12(\{M/4\} + \{(M-1)/2\} + \\ + \{(M-2)/4\} + \{(M-3)/4\}) = 12(M-6/4) - 12(3/4 + 2/4 + 1/4 + 0) = 12(M-3).$$

Этот процесс продолжается до тех пор, пока в каждой из получившихся систем не останется по одному уравнению с одним неизвестным, из которого мы и найдем решение нашей системы. Число таких итераций будет $H = \lceil \log_2(M+1) \rceil + d$, где $d = 0$, если M является степенью двойки, $d = 1$, если M не является степенью двойки. Тогда общее число арифметических операций в этом методе

$$S_2 = S_{2,1} + S_{2,2} + \dots + S_{2,H} = 12(M + M-1 + M-3 + \dots + M - (2H-3)) = \\ = 12HM - 12(1 + 3 + \dots + (2H-3)) = 12HM - 12\left(\frac{(1+2H-3)(H-1)}{2}\right) = \\ = 12HM - 12(H-1)^2 = 12\left(\lceil \log_2(M+1) \rceil + d\right)M - 12\left(\lceil \log_2(M+1) \rceil + d - 1\right)^2.$$

Окончательно $S_2 = 12M\lceil \log_2(M+1) \rceil - 12\left(\lceil \log_2(M+1) \rceil + d - 1\right)^2 + 12dM$, M из (4), $d = 0$, если M является степенью двойки, $d = 1$, если M не является степенью двойки. Очевидно, что это гораздо больше, чем в методе встречной прогонки, но здесь практически всегда все процессоры работают независимо (за исключением тех случаев, когда на процессоре уже найдено решение системы уравнений).

Сведем полученные результаты для методов распараллеливания прогонки без привязки к решению системы (4) и методу Яненко в один список. Здесь K – число неизвестных в системе (1):

1. Классический метод прогонки (метод правой прогонки):

- а) число арифметических операций: $8K-7$;
- б) число независимо работающих МРІ-процессов: 1.

2. Метод встречной прогонки:

- а) число арифметических операций: $8K-2$;
- б) число независимо работающих МРІ-процессов: 2 (почти всегда).

3. Метод параллельно-циклической редукции:

- а) число арифметических операций: $S = 12K\lceil \log_2 K \rceil - 12\left(\lceil \log_2 K \rceil + d - 1\right)^2 + 12dK$, $d = 0$,

если K является степенью двойки, $d = 1$, если K не является степенью двойки;

- б) число независимо работающих МРІ-процессов: $K-1$ (почти всегда).

Из полученных оценок следует, что неочевидно, какой метод прогонки будет эффективнее работать на втором этапе метода Яненко: метод встречной прогонки (число операций меньше, но

и число независимо работающих MPI-процессов мало) либо метод параллельно-циклической редукции (число операций существенно больше, но и число независимо работающих MPI-процессов почти максимально).

Далее мы получим практические результаты, которые можно будет сравнить со сделанными выше теоретическими оценками.

Тестирование

В данном разделе приведены результаты численных экспериментов для определения следующих характеристик рассмотренных методов распараллеливания прогонки:

- эффективность распараллеливания (масштабируемость методов) на параллельных системах с распределенной памятью и гибридных ЭВМ с графическими ускорителями;
- ускорение версии программы с использованием GPU относительно программы без использования GPU.

Масштабируемость методов

Так как метод Яненко и ПКМ предназначены для решения задач на нескольких вычислительных узлах, то исследуем характеристики методов при использовании большого количества вычислительных устройств.

В методике РАМЗЕС-КП метод Яненко реализован только для расчета двумерных задач, поэтому при тестировании будем рассматривать двумерную задачу теплопроводности с числом точек 1000×1000 , рассчитанную как на универсальных процессорах, так и на графических ускорителях. Будем учитывать только время расчета коэффициентов матрицы и нахождение решения методом прогонки.

Будем масштабировать задачу методом умножения – при увеличении числа MPI-процессов в 2 раза число точек задачи также увеличивается в 2 раза.

Введем следующие обозначения: $S_p = pt_1/t_p$ – ускорение от использования p MPI-процессов; $V_p = (S_p/p) 100\%$ – эффективность распараллеливания, где t_1 – время работы программы или на одном вычислительном устройстве; t_p – время работы программы на p вычислительных устройствах.

Для универсальной архитектуры (только универсальные процессоры) термин «вычислительное устройство» означает одно ядро, а для гибридной архитектуры (универсальные процессоры вместе с графическими ускорителями) – один ускоритель.

Сначала сравним времена решения системы (1) различными методами распараллеливания прогонки на втором этапе метода Яненко на гибридной архитектуре (с использованием GPU). Результаты представлены в таблице. Здесь замерялось время работы метода Яненко, где первый и третий этапы выполняются на ускорителе одинаково, а второй этап на универсальных узлах – по-разному.

Таблица 1

Сравнение двух методов нахождения решений на границе процессоров

Метод	Количество гибридных узлов						
	1	2	4	8	16	32	64
ВП	6,66	14,60	14,98	15,32	16,18	17,90	21,21
ПЦР	6,66	14,60	15,14	15,45	15,87	16,35	16,93
ВП/ПЦР	1,00	1,00	0,99	0,99	1,02	1,09	1,25

Примечание: ВП – время решения методом Яненко со встречной прогонкой [с], ПЦР – время решения методом Яненко с параллельно-циклической редукцией [с], ВП/ПЦР – отношение соответствующих времен, Nodes – число гибридных узлов (здесь – один ускоритель и одно ядро универсального узла).

Из таблицы видно, что до 8 гибридных узлов ВП < ПЦР, но на 64 ускорителях метод параллельно-циклической редукции работает на четверть быстрее метода встречных прогонок, поэтому в дальнейших оценках везде будем подразумевать использование ПЦР на втором этапе метода Яненко.

Теперь сравним времена решения двумерной задачи с использованием ПКМ и метода Яненко на двух архитектурах – с использованием графических ускорителей и без. Введем следующие обозначения: ПКМ – время решения параллельно-конвейерным методом [с]; Яненко – время решения методом Яненко [с]; С – универсальная архитектура; CG – гибридная архитектура. Поясним на примере. ПКМ_СG – время решения задачи в секундах на гибридной архитектуре с использованием ПКМ. Дробь ПКМ_С/Яненко_С означает отношение времен решения задачи на универсальной архитектуре с использованием двух методов. На рис. 1 (см. также цветную вкладку) приведена зависимость времени решения прогонки различными методами распараллеливания от числа узлов.

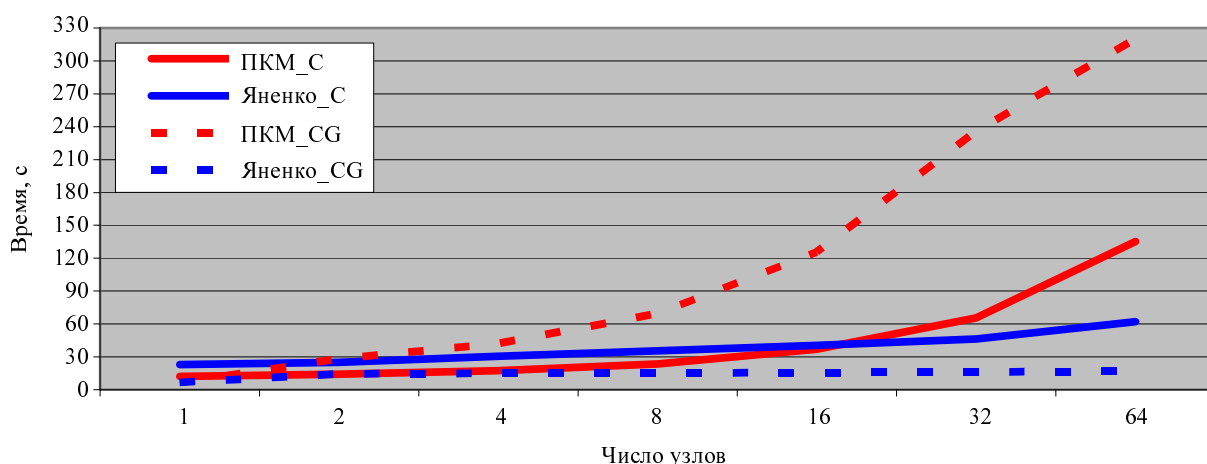


Рис. 1. Время работы методов распараллеливания прогонки в зависимости от числа узлов

На рис. 1 видно, что метод Яненко работает быстрее, чем ПКМ как на универсальной архитектуре (более чем в два раза на 64 узлах), так и на гибридной архитектуре (более чем в 18 раз на 64 узлах). Такая большая разница во времени на 64 узлах между методами объясняется тем, что, как было показано выше, на гибридной архитектуре ПКМ вырождается в последовательный метод прогонки. Также из этого рисунка видно, что реализация метода Яненко на гибридной архитектуре позволила получить ускорение до 3,67 раз по сравнению с универсальной архитектурой.

Представим данные из рис. 1 в виде зависимости эффективности распараллеливания (V_p) от числа узлов на рис. 2 (см. также цветную вкладку).

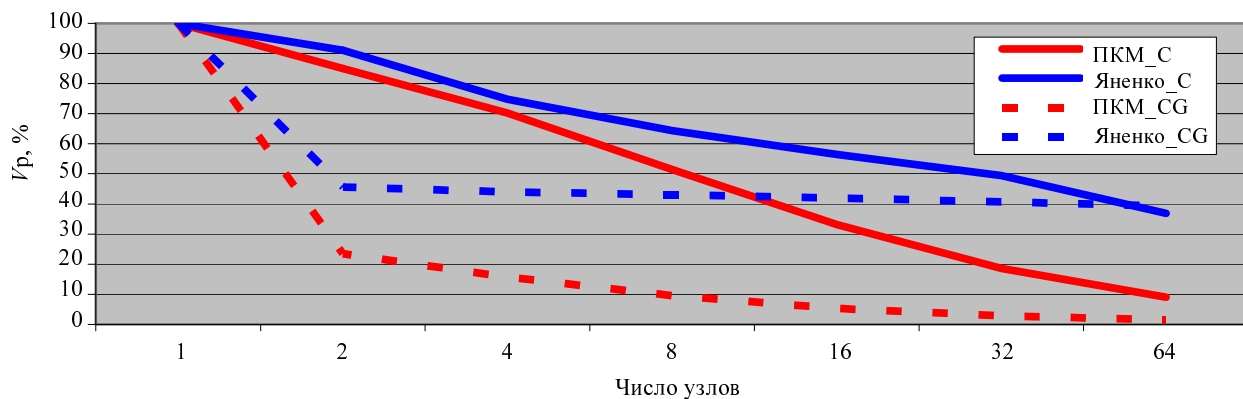


Рис. 2. Эффективность методов распараллеливания прогонки в зависимости от числа узлов

Из рис. 2 видно, что эффективность метода Яненко как на универсальной, так и на гибридной архитектуре при масштабировании до 64 узлов выше 36 %. Эффективность ПКМ на универсальной архитектуре падает более плавно, чем на гибридной архитектуре, а именно: на восьми узлах эффективность составляет более 50 %, а на 64 узлах – около 9 %. На гибридной архитектуре на 64 узлах эффективность составила около 1 %.

Заключение

Выполнены реализация и сравнение двух методов решения СЛАУ с трехдиагональной матрицей: параллельно-конвейерного и метода Яненко.

Реализация метода Яненко отличается от описанной в работе [21] тем, что на этапе нахождения решений на границе процессоров может использоваться как встречная прогонка, так и метод параллельно-циклической редукции. Численные эксперименты показали, что метод параллельно-циклической редукции позволяет быстрее решать СЛАУ, хотя и обладает большей вычислительной сложностью. Такой результат достигается за счет более высокой эффективности распараллеливания на большом числе вычислительных устройств.

По эффективности распараллеливания метод Яненко выигрывает у ПКМ как на универсальной, так и на гибридной архитектуре.

Список литературы

1. Быков А. Н., Веселов В. А., Воронин Б. Л., Ерофеев А. М. Методика РАЗЭС-КП для расчета пространственных движений многокомпонентных теплопроводных сред в эйлеро-лагранжевых координатах // Труды РЯЦ-ВНИИЭФ. 2008. Вып. 13. С. 50–57.
2. Сапронов И. С., Быков А. Н. Параллельно-конвейерный алгоритм // Атом. 2009. № 44. Саров: РЯЦ-ВНИИЭФ. С. 24–25.
3. Davidson A., Zhang Y., Owens J. D. An auto-tuned method for solving large tridiagonal systems on the GPU // Proc. of the 25th IEEE International Parallel and Distributed Processing Symposium, May 2011.
4. Kim H.-S., Wu S., Chang L.-W., Hwu W.-M. A scalable tridiagonal solver for gpus // Parallel Processing (ICPP), International Conference. 2011. P. 444–453.
5. Hockney R. W., Jesshope C. R. Parallel computers: architecture, programming and algorithm. Hilger, Bristol. 1986. P. 274–280.
6. Conte S. D., Boor C. W. D. Elementary Numerical Analysis: An Algorithmic Approach. NY: McGraw-Hill Higher Education. 1980. P. 153–156.
7. NVIDIA Corporation, NVIDIA CUDA Sparse Matrix Library (cuSPARSE), Jan. 2012. <https://developer.nvidia.com/cusparse>.
8. Sengupta S., Harris M., Zhang Y., Owens J. D. Scan primitives for GPU computing // Graphics Hardware. Davis. 2007. P. 97–106.
9. Goddeke D., Strzodka R. Cyclic reduction tridiagonal solvers on GPUs applied to mixed-precision multigrid // IEEE Transactions on Parallel and Distributed Systems. 2011. Vol. 22. P. 22–32.
10. Davidson A., Owens J. D. Register packing for cyclic reduction: A case study // Proc. of the Fourth Workshop on General Purpose Processing on Graphics Processing Units, 2011.
11. Egloff D. High performance finite difference PDE solvers on GPUs // <http://download.quantalea.net/fdm-gpu.pdf>, Feb. 2010.
12. Egloff D. Pricing financial derivatives with high performance finite difference solvers on GPUs // GPU Computing Gems, San Jose, 2012. P. 309–322.
13. Hockney R. W. A fast direct solution of Poisson's equation using Fourier analysis // J. ACM, 1965. Vol. 12. P. 95–113.
14. Sakharnykh N. Efficient tridiagonal solvers for ADI methods and fluid simulation // NVIDIA GPU Technology Conference, San Jose. September 2010.
15. Zhang Y., Cohen J., Owens J. D. Fast tridiagonal solvers on the GPU // Proc. of the 15th ACM SIGPLAN symposium on Principles and practice of parallel programming, PPoPP '10. New York, NY, USA. 2010. P. 127–136.
16. Zhang Y., Cohen J., Davidson A. A., Owens J. D. A hybrid method for solving tridiagonal systems on the GPU // GPU Computing Gems. Morgan Kaufmann. 2011. Vol. 2. P. 117–133.

17. Stone H. S. An efficient parallel algorithm for the solution of a tridiagonal linear system of equations // J. ACM. 1973. Vol. 20. P. 27–38.

18. Chang L.-W., Stratton J. A., Kim H.-S., Hwu W.-M. A scalable, numerically stable, high-performance tridiagonal solver using GPUs // Proc. of the International Conference on High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis (SC'12), IEEE Computer Society Press, Los Alamitos, CA, USA, 2012.

19. Polizzi E., Sameh A. A parallel hybrid banded system solver: The SPIKE algorithm // Parallel Computing. 2006. Vol. 32, N. 2. P. 177–194.

20. Polizzi E., Sameh A. SPIKE: A parallel environment for solving banded linear systems // Computers and Fluids. 2007. Vol. 36, N. 1. P. 113–120.

21. Яненко Н. Н., Коновалов А. Н., Бугров А. Н., Шустов Г. В. Об организации параллельных вычислений и «распараллеливании» прогонки // Сб. «Численные методы механики сплошной среды». Новосибирск. 1978. Т. 9, № 7. С. 139–146.

22. Самарский А. А. Введение в численные методы. М.: Наука, 1982. С. 34–38.

23. Боресков А. В., Харламов А. А., Марковский Н. Д. и др. Параллельные вычисления на GPU. Архитектура и программная модель CUDA. М.: Изд-во Московского ун-та, 2012. С. 241–256.

24. Вержбицкий В. М. Вычислительная линейная алгебра. М.: Директ-Медиа, 2013. С. 296–299.

Comparison of Two Sweep Paralleling Methods for Hybrid Computers with Graphics Processing Units

A. A. Fedorov, A. N. Bykov

Described two methods (the parallel pipeline and the Yanenko method) for solving a system of linear algebraic equations with a tridiagonal matrix on GPU-accelerated parallel computers. Specific features of their implementation both on parallel computers having no accelerators and on hybrid computers are discussed. Arithmetic complexity of the Yanenko method is analyzed, and results of numerical scalability experiments are reported.

АВТОРСКИЙ УКАЗАТЕЛЬ

- Балашов К. И. 190
Баранов Г. В. 84
Басалов В. Г. 178
Безруков С. Г. 84
Белов В. Ю. 84
Белова Ю. С. 68
Белухина П. С. 158
Бережко П. Г. 94
Бурнашов В. А. 158
Быков А. Н. 200
- Вакс В. Л. 132, 140
Васильев А. М. 120
Вахмистров С. А. 132, 148, 158
- Горькаев Д. А. 32
Гребенникова С. Э. 148, 158
- Девяткин А. А. 148
Домрачева Е. Г. 132, 140
Дрожжин В. С. 84, 170
- Ермичев С. Г. 76
- Забродина О. Ю. 94
Злобин А. М. 148
- Иванов А. В. 170
- Казаковская Т. В. 68, 76
Казаковский Н. Т. 46, 58
Кашеев Д. А. 148
Кирсанова Т. Е. 148
Колесников С. В. 170
Королев В. А. 46, 58
Коршунова Т. В. 84
Крылова М. И. 32
Куфтин А. А. 170
- Леваков С. Е. 58
Лизунов К. В. 148
Лукьяненко И. А. 132, 140
- Матвеев В. З. 76
Мирошниченко Н. А. 158
- Михайлов А. Л. 132
Мокрышин В. В. 94
Морозов В. Н. 170
Морозова Т. А. 84
- Найданова Т. Г. 120
Никитин И. А. 32
- Орлов Д. С. 58
- Пичугин А. М. 148
Постников А. Ю. 94
Потемкин Г. А. 84
Потехин А. А. 94
Профе В. Б. 170
Пушков В. А. 120
- Рыжов И. С. 84
- Сизов А. Н. 112
Скорочкин Ю. В. 170
Соегова Г. А. 140
Сысоев Н. Я. 148
- Федоров А. А. 200
- Холостов А. А. 178
- Царева И. А. 94
Цетлин И. В. 170
Цибиков А. Н. 120
- Чулков Д. В. 94
- Шаповалов В. И. 76
Шейков Ю. В. 132, 140, 148, 158
Шеховцев С. С. 170
Шубин В. В. 190
- Юнчина О. Ю. 94
Юрлов А. В. 120
Юхимчук А. А. 6, 58
- Яблоков А. А. 132, 140

Содержание

Раздел 8. Изотопы водорода – физическая химия, безопасность, экология

Юхимчук А. А.

Научно-экспериментальные комплексы для безопасного обращения с тритием и его соединениями 6

Горькаев Д. А., Крылова М. И., Никитин И. А.

Исполнительный механизм аварийной защиты реактора с автономным источником энергии на основе пиротехнического газогенератора 32

Королев В. А., Казаковский Н. Т.

Кондиционирование органических жидких радиоактивных отходов 46

Казаковский Н. Т., Леваков С. Е., Королев В. А., Орлов Д. С., Юхимчук А. А.

Способ кондиционирования воды, содержащей тритий 58

Раздел 9. Материаловедение

Казаковская Т. В., Белова Ю. С.

Сравнительное поведение церия и плутония в различных средах 68

Казаковская Т. В., Шаповалов В. И., Ермичев С. Г., Матвеев В. З.

Уменьшение размеров и веса контейнеров для хранения и перевозки отработанного ядерного топлива путем использования материалов на основе диоксида обедненного урана 76

Коршунова Т. В., Баранов Г. В., Безруков С. Г., Белов В. Ю., Дрожжин В. С., Морозова Т. А., Потемкин Г. А., Рыжов И. С.

Методическое обеспечение термоаналитических исследований реакционных материалов и твердых ракетных топлив 84

Мокрушин В. В., Царева И. А., Забродина О. Ю., Потехин А. А., Бережко П. Г., Постников А. Ю., Чулков Д. В.

Масштабные факторы в анализе однородности порошковых дисперсных систем и смесей на их основе 94

Сизов А. Н.

Влияние теплопроводности конструкционных материалов на эффективность пластинчатых радиаторов многоканальных модулей лазеров с ядерной накачкой 112

Васильев А. М., Юрлов А. В., Пушков В. А., Найданова Т. Г., Цибилов А. Н.

Реакция взрывчатого вещества на основе октогена и ТАТБ на динамическое нагружение методом составного стержня Гопкинсона 120

Лукьяненко И. А., Шейков Ю. В., Вакс В. Л., Домрачева Е. Г., Яблоков А. А., Вахмистров С. А., Михайлов А. Л.

Использование терагерцевой спектроскопии для исследования механизмов термического разложения энергетических материалов 132

<i>Вакс В. Л., Домрачева Е. Г., Соегова Г. А., Яблоков А. А., Лукьяненко И. А., Шейков Ю. В.</i> Исследование кинетики термического разложения энергетических материалов с использованием спектроскопии высокого разрешения терагерцевого частотного диапазона	140
<i>Злобин А. М., Кирсанова Т. Е., Кащеев Д. А., Гребенникова С. Э., Шейков Ю. В., Вахмистров С. А., Сысоев Н. Я., Девяткин А. А., Пичугин А. М., Лизунов К. В.</i> Оценка констант радиолита октогена и ТАТБ при нейтронном облучении	148
<i>Белухина П. С., Бурнашов В. А., Вахмистров С. А., Гребенникова С. Э., Мирошниченко Н. А., Шейков Ю. В.</i> Влияние размерных эффектов и структуры гексогена на его реакционную способность	158

Раздел 10. Инженерные разработки и новые промышленные технологии

<i>Морозов В. Н., Колесников С. В., Цетлин И. В., Профе В. Б., Иванов А. В., Дрожжисин В. С., Скорочкин Ю. В., Куфтин А. А., Шеховцев С. С.</i> Повышение ударостойкости защищенных бортовых накопителей	170
---	-----

Раздел 11. ЭВМ и волоконно-оптические линии

<i>Басалов В. Г., Холостов А. А.</i> Перспективная гибридная топология KNS для систем межпроцессорных обменов на базе СМПО-10G	178
<i>Балашов К. И., Шубин В. В.</i> Контроль нарушений волоконно-оптических линий в распределенных информационно- вычислительных сетях методами интегральной рефлектометрии и прямого детектирования . .	190
<i>Федоров А. А., Быков А. Н.</i> Сравнение двух методов распараллеливания прогонки на гибридных ЭВМ с графическими ускорителями	200

Труды РФЯЦ-ВНИИЭФ

Научно-исследовательское издание

Выпуск 24

В двух частях

Часть 2

Редактор, корректор *Н. Ю. Костюничева*
Компьютерная подготовка оригинала-макета *Е. В. Моисеева*

Подписано в печать 27.04.2021. Формат 60×84/8. Печать офсетная
Усл. печ. л. ~25,4. Уч.-изд. л. ~22. Тираж 200 экз. Зак. тип. 941-2021

Отпечатано в ИПЦ ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ»
607188, г. Саров Нижегородской обл., ул. Силкина, 23

ISBN 978-5-9515-0485-2



9 785951 504852