

## ТЕМПЕРАТУРОПРОВОДНОСТЬ И ТЕПЛОПРОВОДНОСТЬ МЕТАЛЛИЧЕСКОГО ТЕХНЕЦИЯ И СПЛАВОВ Tc-Ru РЕАКТОРНОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ

© 2013 Е.М. Пичужкина, В.Д. Рисованный, А.С. Покровский, А.С. Бутылин

ОАО «ГНЦ НИИАР», Ульяновская область, Димитровград-10

Поступила в редакцию 26.11.2013

В рамках работы проведено исследование теплофизических свойств (температуропроводности и теплопроводности) металлического технеция, а также сплавов Tc-Ru с различным содержанием рутения, полученных в результате облучения мишеней из металлического технеция в реакторе СМ. Ключевые слова: технеций, рутений, сплав, температуропроводность, теплопроводность.

### ВВЕДЕНИЕ

Технеций-99 ( $\beta$ -излучатель,  $T_{1/2} = 2,13 \cdot 10^5$  лет) – радиоактивный отход, накапливающийся в больших количествах в топливе атомных электростанций и представляющий серьезную экологическую опасность. Наиболее перспективный способ утилизации технеция – трансмутация путем облучения нейтронами, в результате которой образуется нерадиоактивный рутений, что может решить проблему уничтожения технеция и его неблагоприятного воздействия на биосферу.

Мишени из металлического технеция подвергаются трансмутации в ядерном реакторе под действием интенсивного потока нейтронов. Важные характеристики мишени, необходимые как для нейтронно-физических расчетов мишени, так и для обеспечения ресурса ее работоспособности в процессе облучения – ее теплофизические свойства: температуропроводность и теплопроводность. В настоящей работе приведены результаты исследования данных свойств для мишеней из металлического технеция, а также для сплавов Tc-Ru с различным содержанием рутения, полученных в результате облучения этих мишеней в реакторе СМ.

### 1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Образцы металлического технеция и сплавов Tc-Ru, полученные в реакторных экспериментах,

*Пичужкина Елена Михайловна, научный сотрудник отделения радионуклидных источников и препаратов, аспирант УлГУ. E-mail: oipr@niiar.ru*

*Рисованный Владимир Дмитриевич, доктор технических наук, профессор, заместитель генерального директора ЗАО «Наука и инновации» – научный руководитель по физико-энергетическому блоку. E-mail: rvd@niiar.ru*

*Покровский Александр Сергеевич, кандидат технических наук, начальник лаборатории отделения реакторного материаловедения. E-mail: ort@niiar.ru*

*Бутылин Антон Сергеевич, инженер отделения реакторного материаловедения. E-mail: ort@niiar.ru*

представляли собой диски серого и светло-серого цвета диаметром примерно 6 мм и толщиной 0,3 мм. По данным спектрофотометрического и эмиссионного спектрального анализа содержание рутения в исследуемых образцах сплавов составило 19 и 70 %.

Температуропроводность образцов в области температур  $20 \div 500$  °С измеряли на исследовательской установке, использующей импульсный метод Паркера. Суть его состоит в следующем. Короткий (длительность 1,3 мс) высокоинтенсивный световой импульс от лампы направлялся на фронтальную поверхность плоского образца, а температурный отклик обратной поверхности образца регистрировался термоэлектрическим преобразователем. Температурный отклик усиливался и передавался на экран цифрового запоминающего осциллографа. С изображения сигнала, с учетом времени развертки, получали показания времени нагрева образца до половины максимальной температуры, а затем проводили расчет температуропроводности образца по следующей формуле:

$$a = (1,38 \times h^2) / (\pi^2 \times \tau_{1/2}), \quad (1)$$

где  $a$  – температуропроводность,  $\text{см}^2/\text{с}$ ;

$h$  – толщина образца, см;

$\tau_{1/2}$  – время, необходимое для нагрева обратной стороны образца до половины максимальной температуры, с;

1,38 – безразмерный коэффициент.

При этом относительная погрешность измерения температуропроводности в диапазоне  $(0,2-70) \cdot 10^{-6} \text{ м}^2/\text{с}$  при числе результатов наблюдений  $n = 5$ , доверительной вероятности  $P = 0,95$  и температуре образца  $20-900$  °С не превысила  $\pm 5$  %.

Значение теплопроводности исследованных образцов определялось расчетным путем с учетом величин их температуропроводности, теплоемкости и плотности.

Плотность образцов определяли экспериментально методом гидростатического взвешивания, основанном на законе Архимеда. Ошибка опре-

деления плотности данным методом составила не более 1 %. Плотность была также определена из рентгенографических данных (рентгеновская или теоретическая плотность) по формуле

$$\rho_{\text{теор}} = \frac{m_{(\text{эл.яч})}}{V_{(\text{эл.яч})}}, \quad (2)$$

где  $m_{(\text{эл.яч})}$  – масса элементарной ячейки для Тс и сплавов Тс-Ru,

$V_{(\text{эл.яч})}$  – объем элементарной ячейки для Тс и сплавов Тс-Ru.

Теплоемкость была получена расчетным путем с использованием литературных данных [1].

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные зависимости температуропроводности от температуры для образцов Тс и сплавов Тс-Ru, образующихся в результате облучения мишеней из технеция в реакторе, приведены на рис. 1. Температуропроводность изученных сплавов практически одинакова и лежит в интервале  $(0,93-1,16) \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{с}$ . Температуропроводность исследованных образцов технеция –  $(0,83-1,09) \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{с}$ , причем ее максимальное значение находится при температуре 300К, а минимальное – при 570К.

Зависимость удельных теплоемкостей технеция и рутения от температуры, согласно работе [1], приведена в табл. 1.

Плотность образцов, определенная методом гидростатического взвешивания оказалась близкой к теоретической, определенной из рентгеновских данных (рис. 2). Это указывает на отсутствие значимой пористости и значимого количества примесей в образцах сплавов.

Полученные зависимости теплопроводности от температуры для образцов Тс и сплавов Тс-Ru приведены на рис. 3.

Теплопроводность изученных сплавов лежит в интервале 23-36 Вт/(м•К), образцов технеция – 21-28 Вт/(м•К).

Для исходной мишени из металлического технеция теплопроводность несколько уменьшается с ростом температуры (минимум значений находится при температуре примерно 570 К), затем возрастает до прежних значений. Для сплавов Тс-Ru теплопроводность растет с увеличением температуры (рис. 3).

Следует заметить, что значения теплопроводности для образцов металлического технеция в данной работе значительно ниже литературных (53-56 Вт/(м•К) [2]). Видимо, это связано с анизотропией свойств наших образцов из-за их текстурированности, которая является следствием способа изготовления исходных мишеней из технеция – прокатки. Как было показано ранее в рентгенографических исследованиях [3], в образцах Тс и сплавов Тс-Ru, имеющих кристаллическую решетку ГПУ-типа, имеет место перераспределение интенсивности дифракционных мак-

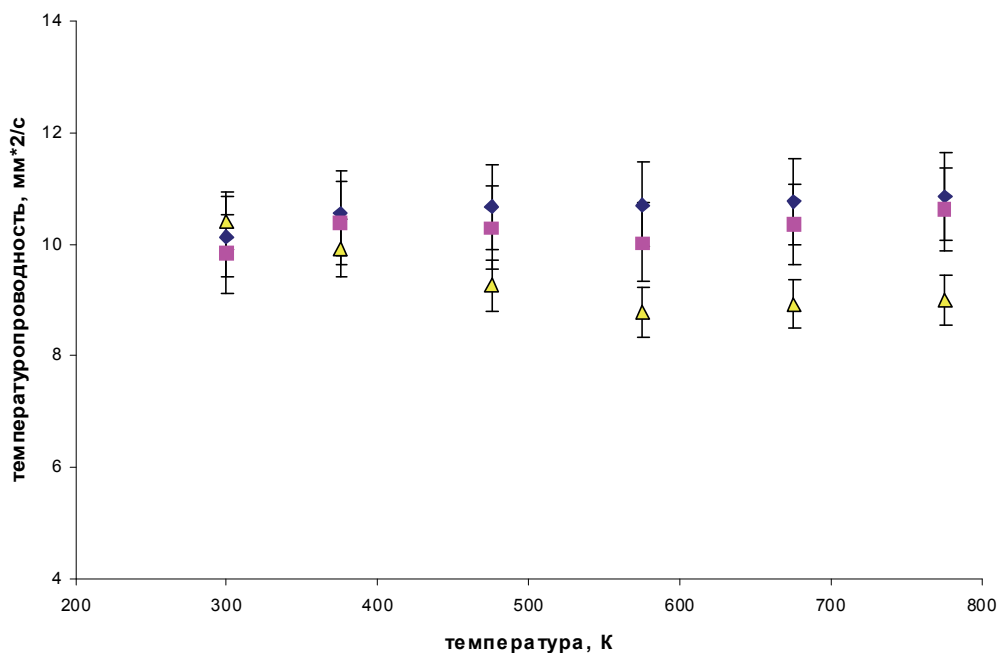


Рис. 1. Зависимости температуропроводности от температуры для образцов Тс и сплавов Тс-Ru:

- ▲ – металлический технеций,
- ◆ – Тс-19%Ru,
- – Тс-70%Ru

Таблица 1. Удельные теплоемкости технеция и рутения [1]

Температура, К	C <sub>p</sub> , Дж/кг*К	
	Tc	Ru
300	210,1	237,9
400	211,4	241,1
500	215,9	245,4
600	225,3	251,1
700	240,8	257,9
800	256,3	264,8

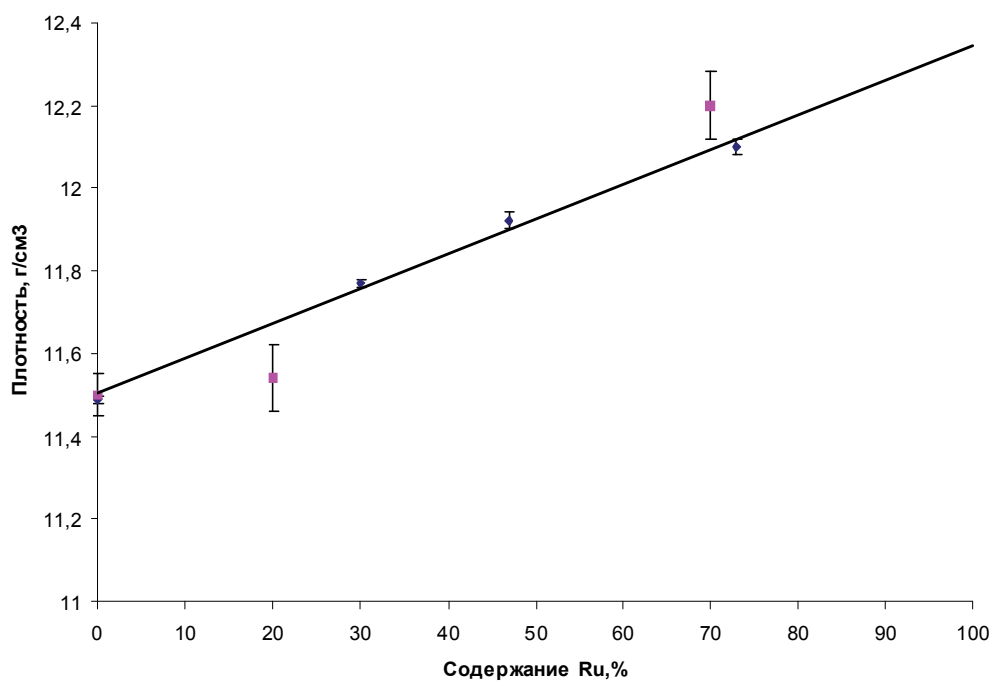


Рис. 2. Зависимость плотности образцов сплавов Tc-Ru от содержания рутения:

- — теоретическая (рентгеновская) плотность,
- — гидростатическая плотность.

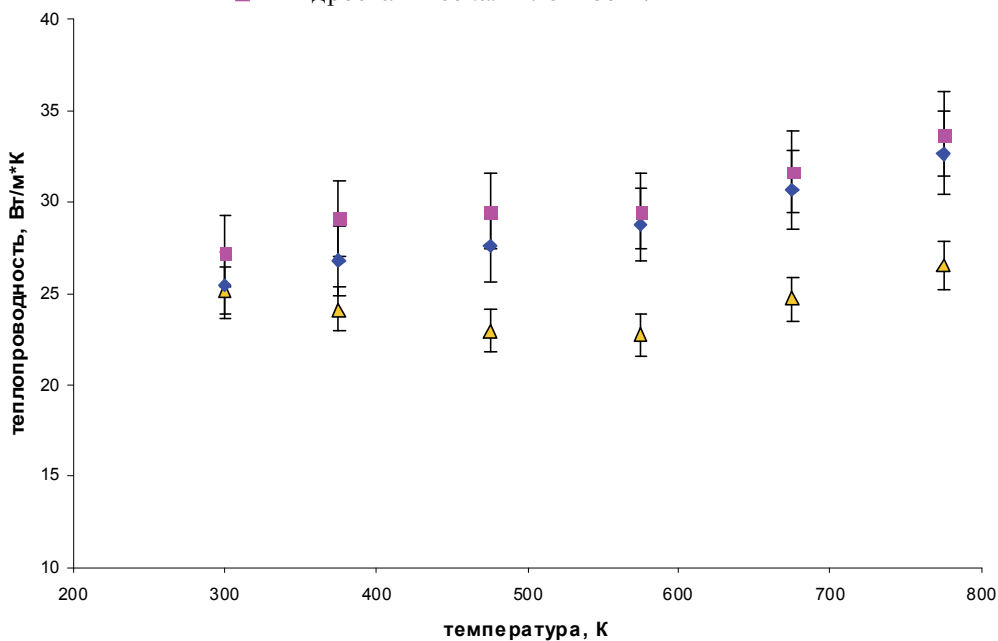


Рис. 3. Зависимости теплопроводности от температуры для образцов Tc и сплавов Tc-Ru:

- ▲ — металлический технеций,
- ◆ — Tc-19%Ru,
- — Tc-70%Ru

симумов с усилением отражений типа 00 $l$ .

Все ГПУ-металлы характеризуются легким скольжением вдоль направлений, лежащих в плоскостях базиса [0001], и трудным скольжением вдоль оси "с". В металлах с ГПУ-решеткой, преимущественно действующее базисное скольжение приводит к тому, что плоскости базиса [0001] выстраиваются параллельно плоскости прокатки.

Таким образом, наличие текстуры приводит к тому, что зерна в сплавах в нашем случае ориентированы не хаотично, а располагаются так, что вдоль плоскости прокатки (плоскости образца) лежат кристаллографические плоскости [0001] некоторого количества кристаллов, составляющих поликристалл. Поликристаллические материалы становятся анизотропными, так как нарушается хаотическая ориентировка кристаллов, которая определяла одинаковое среднестатистическое значение свойств в любом направлении.

Этот эффект сохраняется и в изученных сплавах Tc-Ru реакторного происхождения.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках работы было проведено исследование теплофизических свойств – температуропроводности и теплопроводности – образцов металлического технеция, а также сплавов Tc-Ru с различным содержанием рутения, полученных в результате облучения в реакторе СМ.

При этом было установлено, что температуропроводность изученных сплавов практически оди-

накова и лежит в интервале  $(0,93-1,16) \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{с}$ . Температуропроводность исследованных образцов технеция –  $(0,83-1,09) \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{с}$ .

Теплопроводность изученных сплавов лежит в интервале 23-36 Вт/(м·К), образцов технеция – 21-28 Вт/(м·К), что значительно ниже литературных данных. Видимо, это связано с анизотропией свойств наших образцов из-за их текстурированности.

В ходе проведенных исследований было установлено, что для сплавов Tc-Ru реакторного происхождения происходит рост величины теплопроводности с увеличением температуры. В то же время увеличения теплопроводности с ростом содержания рутения (ростом накопленной дозы) в сплавах реакторного происхождения не наблюдается.

*Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации.*

### СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. *Зиновьев В.Е.* Теплофизические свойства металлов при высоких температурах: справочное издание. М.: Металлургия, 1989. 384 с.
2. *Minato K., Shirasu Y.* // Proc. 5th Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Mol, Belgium, 25-27 November 1998, P. 223–230.
3. Трансмутация Tc-99 и получение искусственного стабильного рутения. II. Исследование сплавов Tc-Ru, полученных при облучении металлического технеция / *С.В. Томилин, В.М. Радченко, К.В. Ротманов, Л.С. Лебедева, А.Г. Яковенко, Е.М. Пичужкина, Ф.Н. Крюков, О.Н. Никитин* // Радиохимия. 2007. Т. 49. №6. С. 546-550.

### THERMAL DIFFUSIVITY AND THERMAL CONDUCTIVITY OF METALLIC TECHNETIUM AND TC-RU ALLOY OF REACTOR ORIGIN

© 2013 E.M. Pichuzhkina, V.D. Risovany, A.S. Pokrovsky, A.S. Butylin

JSC SSC RIAR, Ulyanovsk Region, Dimitrovgrad-10

There were studied thermo-physical properties (thermal diffusivity and thermal conductivity) of metallic technetium and Tc-Ru alloys with different ruthenium content produced as a result of irradiation of metallic technetium targets in the SM reactor.

Key words: technetium, ruthenium, alloy, thermal diffusivity, thermal conductivity.

*Elena Pichuzhkina, Research Fellow, Radionuclide Sources and Radiochemicals Division, Graduate Student at the ULSU.*

*E-mail: orip@niiar.ru*

*Vladimir Risovany, Doctor of Technics Professor, "Science and Innovations", JSC, Deputy Director General, Scientific Supervisor of Physics and Power Engineering Block. E-mail: rvd@niiar.ru*

*Alexander Pokrovsky, Candidate of Technics, Head of Laboratory, Material Testing Complex. E-mail: orm@niiar.ru*

*Anton Butylin, Engineer, Material Testing Complex.*

*E-mail: orm@niiar.ru*