

ВІДГУК

офіційного опонента Геворкяна Едвіна Спартаковича
на дисертаційну роботу Лобача Костянтина В'ячеславовича
«Керамічні матеріали на основі карбіду кремнію для атомної енергетики»,
представлену на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук
за спеціальністю 05.17.11 – технологія тугоплавких неметалічних матеріалів

Актуальність теми.

Аварія на АЕС в Фукусімі у 2011 році показала особливу небезпеку пароцирконієвої реакції, що виникає при підвищенні температури оболонок твєлів через втрату теплоносія. У зв'язку з цим особливої актуальності набули програми по розробці нових матеріалів твєлів, стійких до аварій такого роду і здатних істотно підвищити безпеку ядерних реакторів.

Одними з найбільш перспективних матеріалів для використання в ядерних реакторах в якості оболонок тепловиділяючих елементів замість цирконієвих сплавів в останні роки вважаються композити на основі карбіду кремнію. Перехід від паливної оболонки з цирконієвого сплаву до карбідокремнієвих композиційному матеріалу (SiC/SiC) є складним завданням, що вимагає великих змін в технології виготовлення реакторних матеріалів.

Передові наукові центри також розглядають SiC як перспективний матеріал захисних контейнерів для зберігання та захоронення радіоактивних відходів (РАВ) в геологічні формації. При корозійній стійкості в ґрунтових водах геологічного середовища SiC також володіє унікальним поєднанням теплофізичних і фізико-механічних властивостей і відповідно контейнери, виготовлені з цього матеріалу, дозволять забезпечити надійну ізоляцію небезпечних радіоактивних речовин.

Однак відомо, що для використання SiC в атомній енергетиці існує декілька головних недоліків: крихкість, SiC-матриця розчиняється в теплоносії в умовах експлуатації водо-водяних ядерних реакторів, а також порушення цілісності кристалічної структури й поява тріщин у кераміці SiC в умовах γ -опромінення з боку радіоактивних відходів до поглиненої дози $\sim 10^6$ Гр. Робота присвячена вирішенню вищезгаданих недоліків і тому є досить актуальною.

Актуальність теми роботи підтверджується так само й тим, що вона пов'язана

з виконанням державними програмами та міжнародними проектами: «Дослідження та розробка процесів отримання керамічних та склокерамічних матеріалів для іммобілізації радіоактивних відходів методами порошкової металургії» (ДР № 0111U008995), «Розробка та дослідження радіаційно- та корозійно-стійких керамічних матеріалів для вирішення проблеми ізоляції рідких радіоактивних відходів АЕС України» (ДР № 0116U005097), «Розробка методів іммобілізації високоактивних відходів з використанням керамічних матеріалів, вуглець-вуглецевих композитів та контроль інтенсивних потоків випромінювання при впровадженні радіаційних і ядерних технологій» (ДР № 0111U008534), «Створення неорганічних композитів для довгострокової ізоляції радіоактивних відходів АЕС з реакторами ВВЕР в умовах поверхневого і глибинного захоронення» (ДР № 0116U007072), «Дослідження та розробка методу іммобілізації рідких РАВ АЕС України в скловміщуючі матриці та визначення фізико-механічних властивостей отриманих компаундів» (ДР № 0119U101456), «Створення фундаментальних основ та дослідження процесів формування мікро- та нанокристалічних поверхневих функціональних шарів шляхом іонно-плазмової обробки поверхні конструкційних матеріалів для використання в новітніх розробках в атомній енергетиці та сферах енергетичного, авіакосмічного, загального машинобудування та медицини» (ДР № 0116U005058), Міжнародні партнерські проекти УНТЦ: «Process Development: Low Cost, Continuous Nano-Scale Purification Technology of Powdered Carbonaceous Materials for Applications in Electrochemical Energy Storage Systems and Electroconsolidation Process Technology, US DOE's Initiatives for Proliferation Prevention (IPP Program), Partner project # ANL-T2-0229-UA/P-154, «New protective barriers to contain and immobilize radioactive materials» P-547, Українсько-білоруський проєкт «Розробка і дослідження енергоефективної інноваційної технології синтезу дрібнодисперсного карбиду кремнію з підвищеним ступенем чистоти в електротермічному киплячому шарі» (ДР № 0120U101740).

Ступінь обґрунтованості наукових положень, висновків і рекомендацій, сформульованих в дисертаційній роботі.

Ступінь обґрунтованості наукових положень, висновків і рекомендацій,

сформульованих в дисертаційній роботі К.В. Лобача є високою й базується на аналізі науково-технічних джерел за даною тематикою, грамотній постановці мети і задач дослідження, використанні сучасних методів дослідження і якісному формулюванні отриманих висновків. Отримані результати порівняно з результатами інших світових наукових праць, що підтверджує обґрунтованість наукових положень, висновків і рекомендацій, сформульованих в дисертаційній роботі результатів дослідження.

Достовірність результатів досліджень.

Достовірність та обґрунтованість одержаних результатів дисертаційної роботи досягається використанням сучасного обладнання, стандартних методик визначення властивостей, аналізом отриманих експериментальних даних та їх систематизацією. Наукові результати здобувача впроваджено у навчально-науковому інституті «Фізико-технічний факультет» Харківського національного університету імені В.Н. Каразіна.

До основних нових наукових результатів дисертації слід віднести наступне:

– Вперше отримано методом ВГП в діапазоні температур (1850 – 2100) °С і часу витримки (10 – 45) хвилин та досліджена на фізико-механічні властивості кераміка на основі SiC з добавками Cr (0,3 – 1,2 мас. %). Визначена оптимальна кількість Cr, що становить 0,5 мас. %, при якій досягається максимальне зростання величини мікротвердості, H_v до 28,0 ГПа та тріщиностійкості K_{Ic} до 6,2 МПа·м^{1/2} при температури спікання $T = 2050$ °С та часу витримки 30 хвилин.

– Зафіксовано приріст маси зразка SiC (до 3,27 мг/см²) з добавками Cr на початку корозійних випробувань у гідротермальних умовах, які відповідають експлуатації реактора ВВЕР-1000, що обумовлено утворенням захисних плівок складу Cr₂O₃, та показано загальне уповільнення корозійних процесів в кераміці даного складу при продовженні випробувань.

– Вперше проведені радіаційні випробування (γ -опромінення) керамічного композиційного матеріалу (SiC + 0,5 мас. % Cr) в умовах, що імітують зберігання РАВ українських АЕС у контейнерах упродовж 300 років (~10 періодів

напіврозпаду ^{137}Cs). Показано можливість використання даного композиту в якості матеріалу контейнерів для безпечного зберігання та геологічного захоронення РАВ.

Значимість отриманих результатів для науки і практичного використання.

Отримані здобувачем експериментальні дані впливу Cr на фізико-механічні властивості, корозійну та радіаційну стійкість SiC можуть бути враховані та значно вплинути на вибір матеріалів та технологію виробництва SiC/SiC композитів для виготовлення оболонок твелів, оскільки існує проблема виготовлення тонкостінних трубок (оболонок) з крихкої кераміки SiC та проблема недостатньої корозійної стійкості SiC в умовах, що відповідають експлуатації водо-водяних ядерних реакторів. Обґрунтовано можливість використання SiC(Cr) кераміки в якості матеріалу контейнерів для тимчасового зберігання і геологічного захоронення радіоактивних відходів українських АЕС.

Повнота викладення результатів досліджень в опублікованих працях.

Основні положення та результати дисертаційної роботи достатньо повно опубліковані в 14 наукових працях, з них 7 статей. Усі зазначені статті опубліковані у фахових виданнях, що включені до міжнародних наукометричних баз Scopus та Web of Science. У цілому, рівень і кількість публікацій та апробації матеріалів дисертації на конференціях повністю відповідають вимогам МОН України.

Оцінка змісту дисертаційної роботи:

Дисертаційна робота К.В. Лобача складається зі вступу, шести розділів, висновків, списку використаних джерел, 2 додатків.

У вступі обґрунтовано актуальність та доцільність теми дисертаційної роботи. Сформульована мета і задачі досліджень, показана практичне значення, наукова новизна, особистий внесок здобувача, а також наведені дані про публікації на основі досліджень дисертаційної роботи.

У першому розділі представлено огляд літературних джерел щодо використання матеріалів на основі SiC в ядерній енергетиці, представлені методи й технології отримання керамічних матеріалів з SiC в тому числі методи високошвидкісного нагрівання. Описана концепція створення толерантного палива та розглянуті можливості використання SiC для виготовлення контейнерів

зберігання та захоронення РАВ. Розглянуті шляхи підвищення фізико-механічних властивостей та корозійної стійкості SiC в реакторних умовах. Зроблені висновки та сформульовані задачі досліджень.

У другому розділі змістовно описані характеристики сировинних матеріалів, експериментального обладнання та методики досліджень.

Третій розділ присвячено вивченню формуванню безпористої структури, еволюції мікроструктури та механічним властивостям SiC-кераміки отриманої методом високошвидкісного гарячого пресування (ВГП). Встановлено оптимальні технологічні параметри ($T = 2050\text{ }^{\circ}\text{C}$, $P = 40\text{ МПа}$, $t = 30\text{ хвилин}$ та $V = 200\text{ }^{\circ}\text{C/хв}$) методу ВГП за яких SiC-кераміка сформована з безпористої, монолітної та однорідної структури та має високу щільність (до 99,4 % від теоретичної), твердість $H_V = 27,3\text{ ГПа}$ та коефіцієнт тріщиностійкості $K_{Ic} = 4,3\text{ МПа}\cdot\text{м}^{1/2}$.

У четвертому розділі показано вплив добавок Cr (у діапазоні від 0,3 до 1,2 мас. %) на механічні властивості SiC-кераміки. Встановлено, що саме введення 0,5 мас. % Cr призводить до підвищення тріщиностійкості на (25 – 30) % з $K_{Ic} = 4,3\text{ МПа}\cdot\text{м}^{1/2}$ для чистого SiC до $K_{Ic} = 6,2\text{ МПа}\cdot\text{м}^{1/2}$ для зразка SiC(0,5%Cr) при збереженні високого рівня твердості зі значенням 28,0 ГПа. Досліджено розподіл Cr та формування дрібнодисперсних карбідних сполук (Cr_xC_y) у структурі SiC-кераміки, які сприяють виникненню вторинних фаз та підвищенню тріщиностійкості матеріалів.

У п'ятому розділі вивчено вплив Cr на корозійну стійкість SiC-кераміки в умовах, що імітують внутрішньокорпусне середовище реактора ВВЕР-1000. Експериментально показано, що на зразках SiC(0,5Cr) до 250 годин витримки спостерігається приріст маси, який було вперше виявлено для зразків SiC у гідротермальних умовах випробування. Проведена сканувальна електронна мікроскопія поверхні зразків SiC та SiC(0,5Cr) до і після корозійних випробувань наглядно показала уповільнення корозійних процесів. На основі отриманих експериментальних даних, представлено особливості корозійних процесів на зразках SiC та SiC(0,5Cr).

У шостому розділі проаналізовано поведінку кераміки SiC(0,5Cr) в умовах

γ -опромінення до поглиненої дози $2 \cdot 10^6$ Гр з метою можливості вибору даного композиту, як матеріалу для контейнерів зберігання та захоронення РАВ. Проведено вимір мікротвердості та тріщиностійкості зразків SiC та SiC(0,5Cr) до і після γ -опромінення, який показав, що механічні властивості зразків істотно не змінилися. Мікроструктурний аналіз поперечного зрізу зразків SiC(0,5Cr) до і після γ -опромінення не виявив дефектів, порушень цілісності структури та утворень тріщин.

Висновки до розділів та за результатами роботи сформульовані достатньо чітко і виразно та відповідають змісту дисертаційної роботи.

Список використаних джерел досить повний і охоплює сучасні вітчизняні та зарубіжні публікації із 162 найменувань.

Зміст автореферату відображає основний зміст дисертації та достатньо повно розкриває внесок здобувача в наукові результати та практичну цінність роботи.

По дисертаційній роботі можна зробити наступні зауваження:

1. У введенні дисертаційної роботи було б доцільно приділити більшу увагу порівнянню методів спікання шляхом прямого пропускання струму через прес-форму з традиційними методами спікання – гаряче пресування, гаряче ізостатичне пресування, спікання на повітрі та в вакуумі.

2. У третьому розділі необхідно було б приділити більшу увагу впливу електричних параметрів (струм та напруга) на процеси ущільнення порошку карбиду кремнію.

3. Для повної оцінки впливу методу ВГП на формування безпористої структури в SiC-кераміці доцільно було б зробити теоретичні розрахунки або моделювання процесів спікання.

4. У четвертому розділі для повноти отриманих значень тріщиностійкості SiC-кераміки необхідно було б провести виміри K_{Ic} за стандартною методикою з виготовленням балочки з надрізом та порівняти результати.

5. Температура плавлення хрому 1907°C , незрозуміло яким чином забезпечується спікання в рідкій фазі при гарячому пресуванні з температурой вище

1900°C.

6. Розроблено композиційний матеріал з високими фізико-механічними і корозійними властивостями, однак чомусь не запатентований.

7. На мій погляд треба було звертати більш уваги на механізмі спікання SiC при ВГП.

Вказані недоліки ні яким чином не впливають на загальну позитивну оцінку виконаної роботи.

ВИСНОВОК

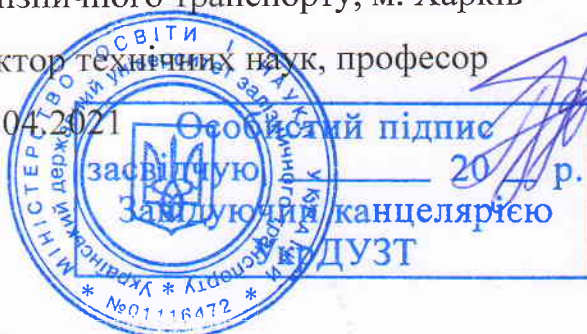
Дисертаційна робота Лобача Костянтина В'ячеславовича «Керамічні матеріали на основі карбиду кремнію для атомної енергетики» за своїм змістом відповідає паспорту спеціальності 05.17.11 – технологія тугоплавких неметалічних матеріалів. Дисертація є завершеною науково-дослідною роботою де розв'язана важлива наукова задача, яка полягає в отриманні матеріалу на основі SiC, який може бути використаний в якості SiC-матриці в SiC/SiC композитах для виготовлення оболонок твелів ядерних реакторів та нових типів контейнерів для зберігання та геологічного захоронення радіоактивних відходів атомних електростанцій. Дисертаційна робота відповідає вимогам п.п. 9,11,12 «Порядку присудження наукових ступенів», затвердженого постановою Кабінету Міністрів України від 24 липня 2013 року №567, а здобувач Лобач Костянтин В'ячеславович, заслуговує присудження наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 05.17.11 – технологія тугоплавких неметалічних матеріалів.

Офіційний опонент

професор кафедри інженерії вагонів та якості
продукції Українського державного університету
залізничного транспорту, м. Харків

доктор технічних наук, професор

19.04.2021



Едвін ГЕВОРКЯН

Едвін Геворкян
Олександр Олександрович