НЕОРГАНИЧЕСКИЕ МАТЕРИАЛЫ, 2021, том 57, № 8, с. 829–837

УДК 546.831.4

ТЕРМОДИНАМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ФАЗОВЫХ РАВНОВЕСИЙ В СИСТЕМЕ U–Zr–N

© 2021 г. А. И. Огарков[1, *], А. Л. Восков[2], И. А. Ковалев[1], А. В. Шокодько[1], С. С. Стрельникова[1], А. С. Чернявский[1], К. А. Солнцев[1]

[1]Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова Российской академии наук, Ленинский пр., 49, Москва, 119991 Россия

[2]Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Ленинские горы, 1, стр. 3, Москва, 119991 Россия

*e-mail: aogarkov@imet.ac.ru

Поступила в редакцию 11.12.2020 г.
После доработки 29.01.2021 г.
Принята к публикации 02.02.2021 г.

Предложена термодинамическая модель конденсированных фаз в тройной системе U–Zr–N при 298–2800 K. Рассматриваемая модель основана на существующих моделях бинарных подсистем U–Zr, U–N и Zr–N и имеющихся в литературе данных по свойствам квазибинарной системы UN–ZrN. Полученная модель позволяет рассчитывать фазовые равновесия с участием жидкой фазы. С помощью модели был рассчитан ряд изобарно-изотермических сечений для системы U–Zr–N.

Ключевые слова: фазовые диаграммы, термодинамические модели, растворы, ликвидус

DOI: 10.31857/S0002337X21080236

ВВЕДЕНИЕ

Смешанный нитрид урана и циркония является перспективным ядерным топливом [1]. Обзор имеющихся данных по тройной системе U–Zr–N был опубликован в работе [2]. Существующие термодинамические модели системы U–Zr–N применимы в узком диапазоне температур и концентраций, а именно: ограничиваются квазибинарной подсистемой UN–ZrN [3], субсолидусными температурами [4–6]. Предложенная в [7, 8] модель тройной системы U–Zr–N была использована для расчета изобарно-изотермических сечений при 1000 и 1727°C, однако кривые ликвидуса и/или солидуса внутри треугольника Гиббса–Розебома не приведены. Рассматриваемые модели, в том числе, не учитывают современные термодинамические модели бинарных подсистем U–Zr, U–N и Zr–N, основанные на подходе *Calphad* и параметрах стабильности простых веществ, обозначаемых как *SGTE Pure Element Database* (*Unary*).

В литературе описаны термодинамические модели всех двойных подсистем тройной системы U–Zr–N. Все они пригодны для расчета соответствующих фазовых диаграмм и применяются с использованием параметров стабильности простых веществ согласно *SGTE Pure Element Database* (*Unary*).

Термодинамическая модель системы U–Zr была построена в работе [9]. Характерной особенностью фазовой диаграммы, важной и необходимой для расчета поверхностей солидуса и ликвидуса, является наличие твердого раствора (***bcc***) на основе β-Zr и γ-U. Термодинамическая модель в рамках рассматриваемой работы предсказывает область расслаивания в этом растворе с верхней критической температурой 998.2 K. Также в системе присутствует фаза δ-“UZr_2” нестехиометрического состава.

Термодинамическая модель системы U–N была построена в работе [10]. На расчетной диаграмме присутствуют полиморфные модификации урана, расплав, газовая фаза, а также нитриды урана: UN, α-U_2N_3 и β-U_2N_3. Для UN и α-U_2N_3 наблюдаются области нестехиометрии, которые описываются моделью подрешеток как $U_1(N,V)_1$ и $(N)_3(U,V)_2$ соответственно, где V – вакансии. Растворимость азота в полиморфных модификациях урана считалась пренебрежимо малой. Вид диаграммы определяется тугоплавким UN ($T_{разл}$ > 3000 K). Жидкость описывалась моделью идеального раствора с ассоциатом UN.

Термодинамическая модель системы Zr–N была построена в [11] и применена для построения модели системы Ti–Zr–N. Она является уточнением термодинамической модели системы Zr–N согласно [12].

В случае системы U–Zr–N экспериментальные данные по ликвидусу и солидусу крайне скудны. Так, в работе [13] изучали плавление образца состава $U_{0.2}Zr_{0.8}N$ и получили температуры солидуса и ликвидуса 2612°C и 2765°C соответственно (согласно [3]). В работе [3] также приводятся кривые ликвидуса и солидуса, полученные в [13] на основе экспериментальных данных путем термодинамических расчетов, однако не уточняется, каких именно. Впоследствии рассматриваемая диаграмма была исправлена в работе [2], так как в оригинальной версии вместо температуры конгруэнтного плавления ZrN использовалась температура его разложения на расплав и азот при атмосферном давлении.

Целью настоящей работы является построение термодинамической модели тройной системы U–Zr–N, согласованной с имеющимися термодинамическими моделями ее бинарных подсистем, а также пригодной для расчета ликвидуса и солидуса.

ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Для термодинамического моделирования жидкости в системе U–Zr–N использовалась следующая полиномиальная модель мольной энергии Гиббса:

$$\begin{gathered}G_{liq}(x,T) = x_{\mathrm{U}}\,{}^{0}G_{\mathrm{U}}^{liq} + x_{\mathrm{Zr}}\,{}^{0}G_{\mathrm{Zr}}^{liq} + x_{\mathrm{N}}\,{}^{0}G_{\mathrm{N}}^{liq} + \\ + RT(x_{\mathrm{U}}\ln x_{\mathrm{U}} + x_{\mathrm{Zr}}\ln x_{\mathrm{Zr}} + x_{\mathrm{N}}\ln x_{\mathrm{N}}) + \\ + x_{\mathrm{U}}x_{\mathrm{Zr}}({}^{0}L_{\mathrm{U,Zr}}^{liq} + {}^{1}L_{\mathrm{U,Zr}}^{liq}(x_{\mathrm{U}} - x_{\mathrm{Zr}})) + x_{\mathrm{U}}x_{\mathrm{N}}\,{}^{0}L_{\mathrm{U,N}}^{liq} + \\ + x_{\mathrm{Zr}}x_{\mathrm{N}}({}^{0}L_{\mathrm{Zr,N}}^{liq} + {}^{1}L_{\mathrm{Zr,N}}^{liq}(x_{\mathrm{Zr}} - x_{\mathrm{N}})) + x_{\mathrm{U}}x_{\mathrm{Zr}}x_{\mathrm{N}}^{2}\,{}^{0}L_{\mathrm{U,Zr,N,N}}^{liq},\end{gathered}$$

где x_{U}, x_{Zr}, x_{N} – мольные доли компонентов в жидкой фазе, ${}^{0}G_{\mathrm{U}}^{liq}$, ${}^{0}G_{\mathrm{Zr}}^{liq}$ и ${}^{0}G_{\mathrm{N}}^{liq}$ – мольные энергии Гиббса жидких компонентов, ${}^{i}L^{liq}$ – параметры термодинамической модели жидкости.

Для системы U–N параметры полиномиальной модели были получены на основе модели ассоциированных растворов [10] следующим образом:

1. На основе модели была рассчитана фазовая диаграмма системы U–N. Далее были рассчитаны значения избыточной энергии Гиббса жидкой фазы (L) вдоль участка ликвидуса, соответствующего равновесию UN-L.

2. Рассчитанные значения избыточной энергии Гиббса аппроксимировались моделью регулярного раствора с зависящим от температуры параметром.

Попытки напрямую сочетать модель ассоциированных растворов в системе U–N с полиномиальными моделями в системах U–Zr и Zr–N (с помощью метода Муггиани) приводили к появлению областей расслаивания в жидкой фазе.

Для двойных твердых растворов на основе α-U и β-U использовалась модель регулярных растворы с энергией Гиббса вида:

$$\begin{gathered}G^{\phi}(x,T) = x_{\mathrm{U}}\,{}^{0}G_{\mathrm{U}}^{\phi} + x_{\mathrm{Zr}}\,{}^{0}G_{\mathrm{Zr}}^{\phi} + \\ + RT(x_{\mathrm{U}}\ln x_{\mathrm{U}} + x_{\mathrm{Zr}}\ln x_{\mathrm{Zr}}) + x_{\mathrm{U}}x_{\mathrm{Zr}}\,{}^{0}G_{\mathrm{U,Zr}}^{\phi},\end{gathered}$$

где ϕ – ortho- или tetr-сингония для α-U и β-U соответственно. Для α-U_2N_3 и δ-“UZr_2” использовались модели подрешеток $N_3(U,V)_2$ и $Zr_{1/3}(U,Zr)_{2/3}$ соответственно со следующими выражениями для энергии Гиббса:

$$\begin{gathered}G^{\alpha-\mathrm{U_2N_3}}(y,T) = y_{\mathrm{U}}\,{}^{0}G_{\mathrm{N:U}}^{\alpha-\mathrm{U_2N_3}} + y_{V}\,{}^{0}G_{\mathrm{N}:V}^{\alpha-\mathrm{U_2N_3}} + \\ + 2RT(y_{\mathrm{U}}\ln y_{\mathrm{U}} + y_{V}\ln y_{V}) + \\ + y_{\mathrm{U}}y_{V}({}^{0}L_{\mathrm{N:U},V}^{\alpha-\mathrm{U_2N_3}} + {}^{1}L_{\mathrm{N:U},V}^{\alpha-\mathrm{U_2N_3}}(y_{\mathrm{U}} - y_{V})),\end{gathered}$$

$$\begin{gathered}G^{\delta-\mathrm{U_{0.333}Zr_{0.667}}}(y,T) = y_{\mathrm{Zr}}G_{\mathrm{Zr}}^{\delta} + y_{\mathrm{U}}G_{\mathrm{Zr_{0.333}U_{0.667}}}^{\delta} + \\ + \frac{2}{3}RT(y_{\mathrm{U}}\ln y_{\mathrm{U}} + y_{\mathrm{Zr}}\ln y_{\mathrm{Zr}}) + \\ + y_{\mathrm{U}}y_{\mathrm{Zr}}({}^{0}L_{\mathrm{Zr:U,Zr}}^{\delta} + {}^{1}L_{\mathrm{Zr:U,Zr}}^{\delta}(y_{\mathrm{U}} - y_{\mathrm{Zr}})),\end{gathered}$$

где y_{U}, y_{Zr}, y_{N}, y_{V} – мольные доли составляющих в соответствующих подрешетках.

Для твердых тройных растворов *hcp* (на основе и α-Zr) *bcc* (на основе β-Zr и γ-U) и *fcc* (смешанный нитрид (Zr, U)N_x) использовалась модель подрешеток вида $(\mathrm{Zr, U})_1(\mathrm{N}, V)_a$, где a – емкость подрешетки. Для *hcp*, *bcc* и *fcc* a = 0.5, 3 и 1 соответственно. Энергия Гиббса на 1 моль формульной единицы выглядит следующим образом:

Таблица 1. Фазы, сингонии и подрешетки в системе U–Zr–N

Фаза	Сингония	Подрешетки
liq	–	$(U, Zr, N)_1$
α-U	*ortho*	$(U, Zr)_1$
β-U	*tetr*	$(U, Zr)_1$
α-Zr	*hcp*	$(U, Zr)_1(N, V)_{0.5}$
(γ-U,β-Zr)*	*bcc*	$(U, Zr)_1(N,V)_3$
$(U,Zr)N_x$	*fcc*	$(U, Zr)_1(N,V)_1$
α-U_2N_3	*bcc*	$N_3(U,V)_2$
β-U_2N_3	*hex*	$U_{0.413}N_{0.587}$
δ-UZr_2	*hex*	$Zr_{1/3}(U,Zr)_{2/3}$

* Твердый раствор.

$$G^{\phi}(y,T,a) = y_{Zr}y_N\,{}^0G^{\phi}_{Zr:N} + y_Uy_N\,{}^0G^{\phi}_{U:N} + y_{Zr}y_V\,{}^0G^{\phi}_{Zr} + y_Uy_V\,{}^0G^{\phi}_{U} + RT[y_{Zr}\ln y_{Zr} + y_U\ln y_U + ay_N\ln y_N + ay_V\ln y_V] + y_Uy_{Zr}\left(\sum_{i=0}^{2}{}^iL^{\phi}_{U,Zr}(y_U - y_{Zr})^i\right) + y_{Zr}y_Ny_V\left(\sum_{i=0}^{1}{}^iL^{\phi}_{Zr:N,V}(y_N - y_V)^i\right) + y_Uy_Ny_V\left(\sum_{i=0}^{1}{}^iL^{\phi}_{U:N,V}(y_N - y_V)^i\right),$$

где $\phi = hcp$, *bcc* или *fcc*, ${}^iL^{\phi}$ – параметры термодинамической модели, а ${}^0G^{\phi}_{Zr}$, ${}^0G^{\phi}_{U}$, ${}^0G^{\phi}_{Zr:N}$ и ${}^0G^{\phi}_{U:N}$ – энергии Гиббса циркония, урана, ZrN_a и UN_a полиморфной модификации ϕ соответственно.

Рассматриваемый список всех стехиометрических и нестехиометрических фаз, включенных в термодинамическую модель системы U–Zr–N в данной работе, приведен в табл. 1, в которой указаны сингонии, а также емкость и составляющие всех подрешеток в модели подрешеток.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Рекомендованные параметры моделей фаз в тройной системе U–Zr–N и их источники приведены в табл. 2–5. Все параметры моделей, кроме ${}^0G^{liq}_{U,N}$ для расплава в системе U–N, ${}^iL^{hcp}_{U,N:V}$ для тройного раствора на основе α-Zr, и ${}^0G^{bcc}_{U:N}$ для тройного раствора на основе β-Zr и γ-U и ${}^0L^{fcc}_{U,Zr}$ для твердого раствора $(U, Zr)N_x$, были взяты либо из работ, посвященных термодинамическому моделированию соответствующих двойных систем [8–10], либо из *SGTE Pure Element Database* (*Unary*).

Недостающие параметры были получены следующим образом в указанной последовательности:

1. ${}^0L^{liq}_{U,N}$ получен аппроксимацией значений $G(x,T)$ [9] вдоль кривой ликвидуса.

2. ${}^iL^{hcp}_{U,N:V}$ и ${}^0L^{bcc}_{U,N:V}$ приравнены к ${}^iL^{hcp}_{Zr,N:V}$ и ${}^iL^{hcp}_{Zr,N:V}$ [10].

3. Температурные зависимости ${}^0G^{bcc}_{U:N}$ и ${}^0G^{hcp}_{U:N}$ выбраны так, чтобы добиться корректного предельного поведения соответствующих твердых растворов в двойной подсистеме U–N.

4. Значение ${}^0L^{fcc}_{U,Zr}$ было оптимизировано для обеспечения верхней критической температуры области расслаивания 1000 K в фазе $(U,Zr)N_x$. Полученное значение ${}^0L^{fcc}_{U,Zr} = 16.61\ \frac{кДж}{моль}$ близко к рекомендованному в [6, 7] (18.41 кДж/моль).

5. Значение ${}^0L_{U,Zr,N,N}$ было оптимизировано с целью достижения согласования с [3, 13], т.е. достижения эвтектики в квазибинарных системах Zr–N и U–N при 2850–2900 K.

Изобарно-изотермические сечения для $T = 500$, 1300, 1800, 2000, 2500 K и $p(N_2) = 1$ бар приведены на рис. 1–5. Они рассчитаны с помощью программы TernAPI [14] с использованием метода

Таблица 2. Параметры модели подрешеток для трехкомпонентных растворов в системе U–Zr–N

Фаза	Параметры модели, Дж/моль	Источник
liq	${}^{0}L^{liq}_{\mathrm{U,Zr}} = 33465.2 - 14.55$; ${}^{1}L^{liq}_{\mathrm{U,Zr}} = 19809.4 - 18.07T$	[9]
	${}^{0}L^{liq}_{\mathrm{Zr,\,N}} = -427557$; ${}^{1}L^{liq}_{\mathrm{Zr,N}} = 153838$	[11]
	${}^{0}L^{liq}_{\mathrm{U,N}} = -408051.4 + 5092.457T - 786.7367T\ln T + 0.6714185T^2 - 8.758360 \times 10^{-5}T^3$ ${}^{0}L^{liq}_{\mathrm{U,Zr,N,N}} = -936000$	Настоящая работа
α-Zr	${}^{0}L^{liq}_{\mathrm{U,Zr}} = 24184.4$	[9]
	${}^{0}L^{hcp}_{\mathrm{Zr:N},V} = -139011 + 45.439T$; ${}^{1}L^{hcp}_{\mathrm{Zr:N},V} = -41938$	[11]
	${}^{i}L^{hcp}_{\mathrm{U:N},V} = {}^{i}L^{hcp}_{\mathrm{Zr:N},V}$	Настоящая работа
(γ-U,β-Zr)*	${}^{0}L^{bcc}_{\mathrm{U,Zr}} = 23296.9 - 8.97T$; ${}^{1}L^{bcc}_{\mathrm{U,Zr}} = 21149.0 - 16.93T$; ${}^{2}L^{bcc}_{\mathrm{U,Zr}} = 2841.6$	[9]
	${}^{0}L^{bcc}_{\mathrm{Zr,N:}V} = -1508137$	[11]
	${}^{0}L^{bcc}_{\mathrm{U,N:}V} = {}^{0}L^{bcc}_{\mathrm{Zr,N:}V}$	Настоящая работа
$(\mathrm{U,Zr})\mathrm{N}_x$	${}^{0}L^{fcc}_{\mathrm{Zr:N},V} = 19575$	[11]
	${}^{0}L^{fcc}_{\mathrm{U:N},V} = 26878.59$	[10]
	${}^{0}L^{fcc}_{\mathrm{U,\,Zr}} = 16610$	Настоящая работа

* Твердый раствор.

Таблица 3. Параметры модели подрешеток для двухкомпонентных растворов в подсистеме U–N тройной системы U–Zr–N

Фаза	Параметры модели, Дж/моль	Источник
δ-“$\mathrm{UZr_2}$”	${}^{0}L^{\delta}_{\mathrm{Zr:N,Zr}} = -2209.76 + 6.740T$; ${}^{1}L^{\delta}_{\mathrm{Zr:U,Zr}} = 236.686 - 5.874T$; ${}^{0}G^{\delta}_{\mathrm{Zr}} = 527.5 + {}^{0}G^{hcp}_{\mathrm{Zr}}$; ${}^{0}G_{\mathrm{Zr_{0.333}U_{0.667}}} = 588.19 + 2.768T + \frac{1}{3}\,{}^{0}G^{hcp}_{\mathrm{Zr}} + \frac{2}{3}\,{}^{0}G^{ortho}_{\mathrm{U}}$	[9]
α-U	${}^{0}L^{ortho}_{\mathrm{U,Zr}} = 30312.4$	[9]
β-U	${}^{0}L^{tetr}_{\mathrm{U,Zr}} = 27980.5$	[9]
α-$\mathrm{U_2N_3}$	${}^{0}L^{\alpha\text{-}\mathrm{U_2N_3}}_{\mathrm{N:U},V} = -157613.7 + 263.18811T$; ${}^{1}L^{\alpha\text{-}\mathrm{U_2N_3}}_{\mathrm{N:U},V} = -384410.16$; ${}^{0}G^{\alpha\text{-}\mathrm{U_2N_3}}_{\mathrm{N:U}} = 1.5\,{}^{0}G^{gas}_{\mathrm{N_2}} + 150000$; $0.2\,{}^{0}G^{\alpha\text{-}\mathrm{U_2U_3}}_{\mathrm{N:U}} = {}^{0}G^{\alpha\text{-}\mathrm{U_{0.400}N_{0.600}}}_{\mathrm{N:U}} = 0.4\,{}^{0}G^{bcc}_{\mathrm{U}} + 0.3G^{gas}_{\mathrm{N_2}} - 152126.72 + 126.53137T -$ $- 9.890359T\ln T + 1.977238 \times 10^{-3}T^2 - 0.63222 \times 10^{-6}T^3 + 345338/T$	[10]
β-$\mathrm{U_2N_3}$	${}^{0}G_{\mathrm{U_{0.587}N_{0.413}}} = -151899.72 + 172.94947T - 29.278101T\ln T - 0.828498 \times 10^{-3}T^2 -$ $- 0.45202 \times 10^{-6}T^2 + 417539/T$ (стехиометрическое соединение)	[10]

Таблица 4. Энергии Гиббса образования терминальных составов модели подрешеток для трехкомпонентных растворов в системе U–Zr–N

Фаза	Параметры модели, Дж/моль	Источник
α-Zr	${}^0G^{hcp}_{\mathrm{Zr:N}} = -150\,903 + 43.853T + {}^0G^{hcp}_{\mathrm{Zr}} + 0.25{}^0G^{gas}_{\mathrm{N_2}}$; ${}^0G^{hcp}_{\mathrm{U:N}} = 1000 + {}^0G^{hcp}_{\mathrm{Zr}} + 0.25{}^0G^{gas}_{\mathrm{N_2}}$	[11]
(γ-U,β-Zr)*	${}^0G^{bcc}_{\mathrm{Zr:N}} = {}^0G^{fcc}_{\mathrm{Zr:N}} + {}^0G^{gas}_{\mathrm{N_2}} + 632\,009 + 321.432T$	[11]
	${}^0G^{bcc}_{\mathrm{U:N}} = {}^0G^{ortho}_{\mathrm{U}} + 1.5{}^0G^{gas}_{\mathrm{N_2}} + 800\,000 + 321.432T$	Настоящая работа
$(\mathrm{U,Zr})\mathrm{N}_x$	$0.5{}^0G^{fcc}_{\mathrm{U:N}} = -156\,765.70 + 157.03712T - 27.765544T\ln T - 0.037916 \times 10^{-3}T^2 - 0.38839 \times 10^{-6}T^3 + 191\,878T^{-1}$; ${}^0G^{fcc}_{\mathrm{U:}\mathscr{V}} = 50\,000 + {}^0G^{ortho}_{\mathrm{U}}$	[10]
	${}^0G^{fcc}_{\mathrm{Zr:N}} = FT$ (см. табл. 5)	[11]

* Твердый раствор.

Таблица 5. Энергия Гиббса образования для ZrN (***fcc***) [11] обозначена в табл. 4 как *FT*

Уравнение	Температурный интервал, K
$-367\,080.182 + 278.330233T - 46.4312194T\ln T - 3.52792791 \times 10^{-3}T^2 + 1.33236681 \times 10^{-9}T^3 + 358\,416.094/T$	298.15–2000
$-309\,671.768 - 11.4672139T - 9.01132806T\ln T - 1.42983599 \times 10^{-2}T^2 + 5.79050986 \times 10^{-7}T^3 - 16\,048\,445/T$	2000–2600
$-357\,218.131 + 237.61238T - 41.3250297T\ln T - 4.69480362 \times 10^{-3}T^2 + 5.0809381 \times 10^{-8}T^3 - 3\,201\,806/T$	2000–3225
$-302\,090.81 + 345.052575T - 58.5870002T\ln T$	3225–5000

выпуклых оболочек. Можно наблюдать, что образование жидкой фазы начинается в области диаграммы, богатой ураном. Попытки провести расчет сечения при температурах 2800–3120 K приводят к тому, что фаза (U, Zr)N инконгруэнтно плавится с выделением азота, о чем не упоминается в [3, 13] (при оценке параметра ${}^0L^{\mathrm{liq}}_{\mathrm{U,Zr,N,N}}$ газообразный азот исключался из расчета фазовой диаграммы). Это на 200–300 K ниже, чем температуры инконгруэнтного плавления UN и ZrN соответственно. Следует отметить, что при $T > 3120$ K в жидкой фазе появляется область расслаивания в области диаграммы, обогащенной цирконием. Это не позволяет рекомендовать по-

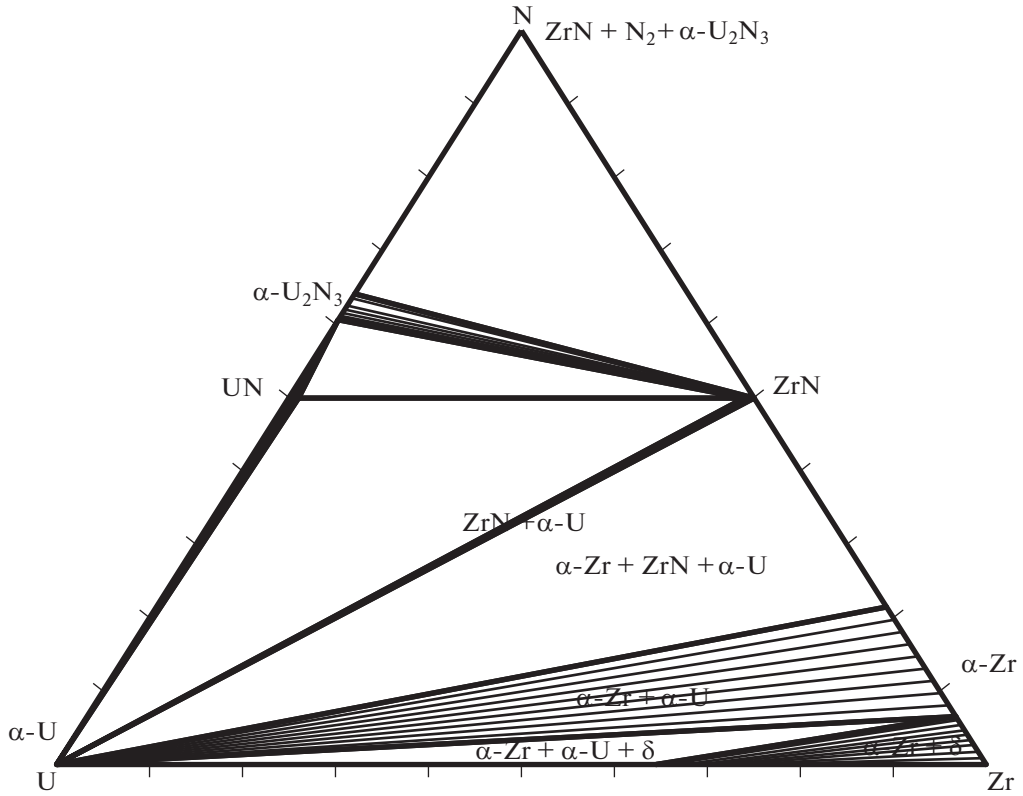

Рис. 1. Расчетное изобарно-изотермическое сечение тройной системы U–Zr–N при $T = 500$ K и $p(N_2) = 1$ бар.

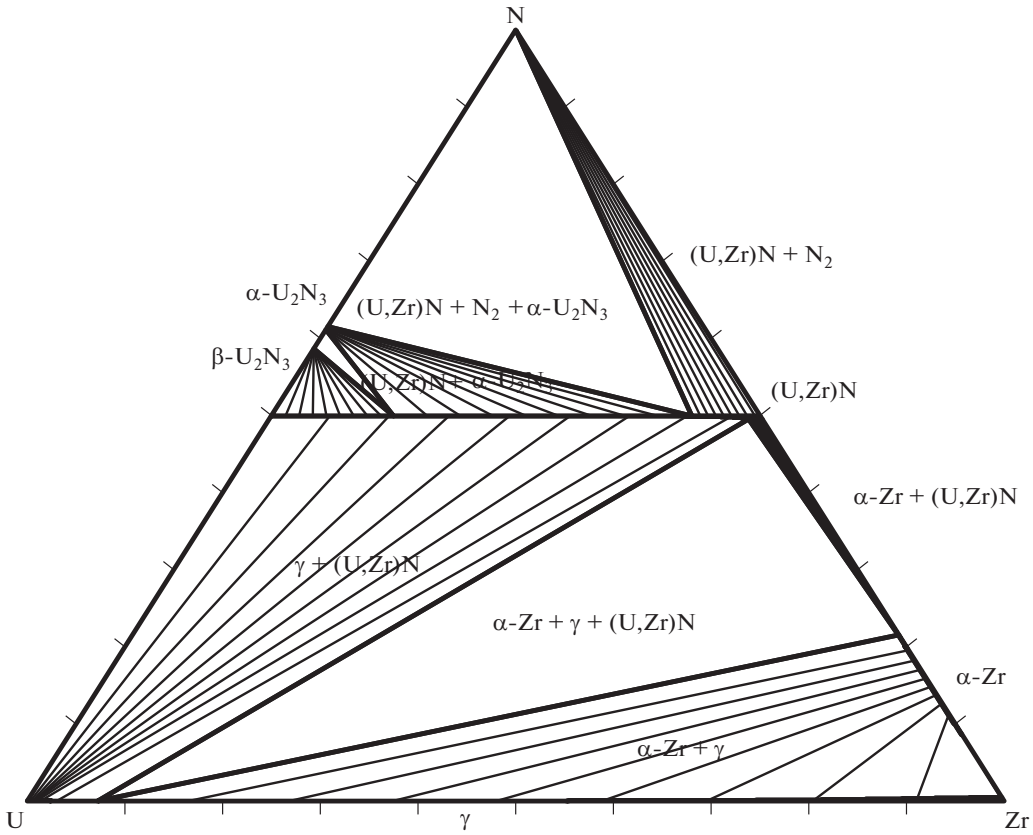

Рис. 2. Расчетное изобарно-изотермическое сечение тройной системы U–Zr–N при $T = 1300$ K и $p(N_2) = 1$ бар.

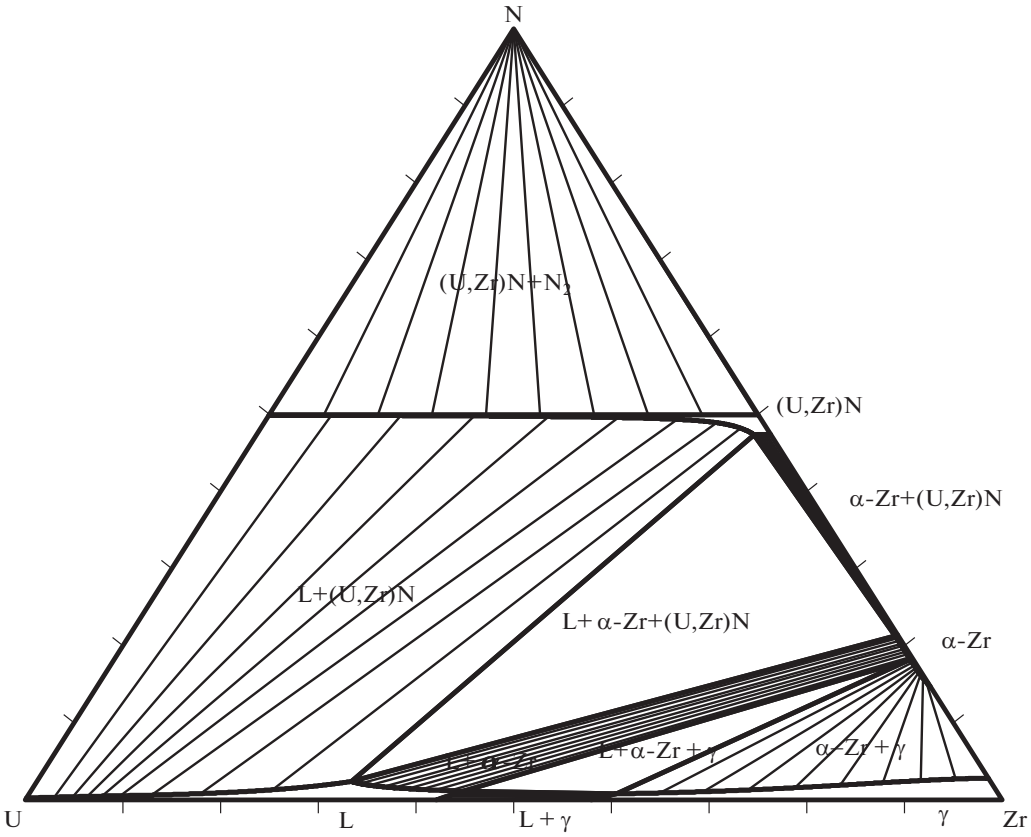

Рис. 3. Расчетное изобарно-изотермическое сечение тройной системы U–Zr–N при $T = 1800$ K и $p(N_2) = 1$ бар.

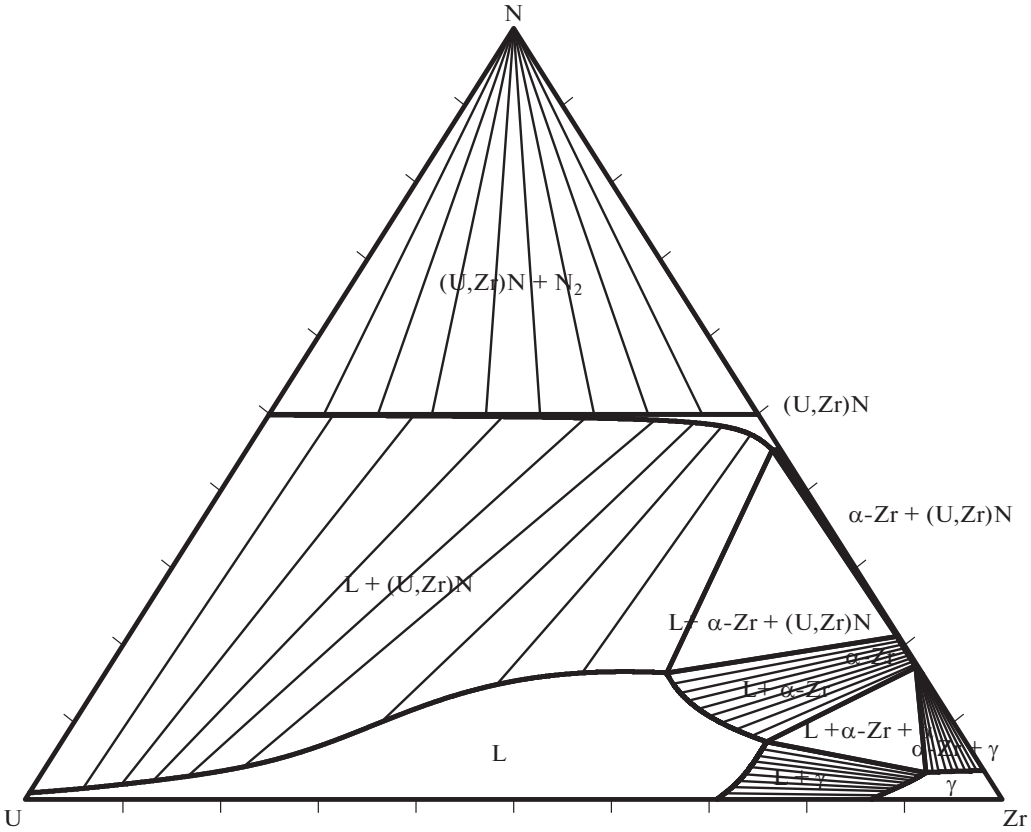

Рис. 4. Расчетное изобарно-изотермическое сечение тройной системы U–Zr–N при $T = 2000$ K и $p(N_2) = 1$ бар.

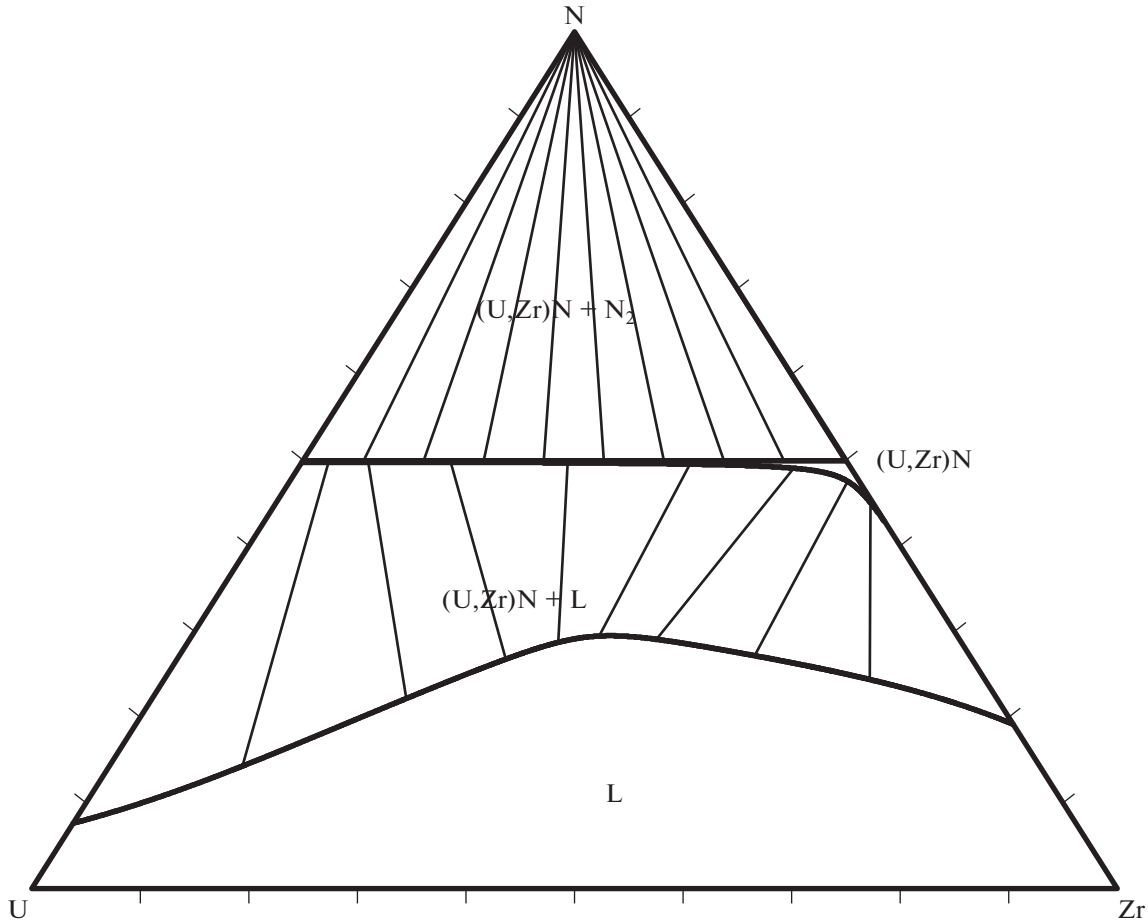

Рис. 5. Расчетное изобарно-изотермическое сечение тройной системы U–Zr–N при $T = 2500$ K и $p(N_2) = 1$ бар.

лученную модель для расчетов фазовых равновесий при $T > 2800$ K.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Построена термодинамическая модель тройной системы U–Zr–N, которая основана на описанных в литературе термодинамических моделях ее двойных подсистем и пригодна для использования при 2800 K. Для расширения ее температурной области применения необходимо следующее:

– оптимизация параметров полиномиальной модели жидкой фазы системы U–N с использованием экспериментальных данных с учетом рассматриваемых значений энергии Гиббса в модели ассоциированных растворов;

– экспериментальное определение поверхности ликвидуса при 1800–2800 K, а также конкруэнтности или инконгруэнтности плавления фазы (U, Zr)N при разных давлениях азота с последующим использованием этих данных для оптимизации параметров модели.

БЛАГОДАРНОСТЬ

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 20-13-00392) (Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова Российской академии наук).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kovalev I.A., Shokodko I.A., Shevtsov S.V., Ogarkov A.I. et al.* Development of a Fuel Element on the Basis of the Composition (Zr, U)N for a High-Temperature Reactor // J. Phys.: Conf. Ser. 2018. V. 1134. ID 012075. https://doi.org/10.1088/1742-6596/1134/1/012075
2. *Perrot P.* Nitrogen – Uranium – Zirconium. Datasheet from Landolt-Börnstein – Group IV Physical Chemistry. V. 11E3. “Refractory metal systems”. P. 475–479. https://doi.org/10.1007/978-3-642-00771-2
3. *Thetford R., Mignanelli M.* The Chemistry and Physics of Modelling Nitride Fuels for Transmutation // J. Nucl. Mater. 2003. V. 320. № 1–2. P. 44–53. https://doi.org/10.1016/S0022-3115(03)00170-3
4. *Ogawa T., Akabori M.* Thermodynamic Properties and Multiphase Diffusion Paths of the Ternary Sys-

tem U–Zr–N // J. Alloys Compd. 1994. V. 213–214. P. 173–177.
https://doi.org/10.1016/0925-8388(94)90899-0

5. *Ogawa T., Akabori M., Kobayashi F., Haire R.G.* Thermochemical Modeling of Actinide Alloys Related to Advanced Fuel Cycles // J. Nucl. Mater. 1997. V. 247. P. 215–221.
https://doi.org/10.1016/S0022-3115(97)00047-0

6. *Akabori M., Itoh A., Ogawa T.* Formation of Nitrides at the Surface of U–Zr alloys // J. Nucl. Mater. 2001. V. 289. № 3. P. 342–345.
https://doi.org/10.1016/S0022-3115(01)00426-3

7. *Holleck H., Ishii T.* Berechnung von Gleichgewichten in ternaeren Systemen Uran – Uebergangsmetall – Stickstoff. Report KFK-1754. Karlsruhe: Kemforschungszentrum, 1973.
https://doi.org/10.5445/IR/270005768

8. *Holleck H.* Ternary Phase Equilibria in the Systems Actinide-Transition Metal-Carbon and Actinide-Transition Metal-Nitrogen. Thermodynamics of Nuclear Materials. Proc. Symp., 4th, Vienna, October 21–25, 1975. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, V. 2. P. 213–264. https://publikationen.bibliothek.kit.edu/270009072/3811449

9. *Wei Xiong, Wei Xie, Chao Shen, Dane Morgan* Thermodynamic Modeling of the U–Zr System – A Revisit, J. Nucl. Mater. 2013. V. 443. № 1–3. P. 331–341.
https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.07.034

10. *Chevalier P.-Y., Fischer E., Cheynet B.* Thermodynamic Modelling of the N–U System // J. Nucl. Mater. 2000. V. 280. № 2. P. 136–150.
https://doi.org/10.1016/S0022-3115(00)00043-X

11. *Sridar S., Kumar R., Hari Kumar K.C.* Thermodynamic Modelling of Ti–Zr–N System // Calphad. 2017. V. 56. P. 102–107.
https://doi.org/10.1016/j.calphad.2016.12.003

12. *Xiaoyan Ma, Changrong Li, Kewu Bai, Ping Wu, Weijing Zhang.* Thermodynamic Assessment of the Zr–N System // J. Alloys Compd. 2004. V. 373. № 1–2. P. 194–201.
https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2003.10.051

13. *Punni J.S., Mignanelli J.S.* Investigation of the Stability of U and U, Zr Nitrides at High Temperatures. Harwell: AEAT/R/NS/0443, AEAT, 2001.

14. *Voskov A.L., Dzuban A.V., Maksimov A.I.* TernAPI Program for the Calculation of Ternary Phase Diagrams with Isolated Miscibility Gaps by the Convex Hull Method // Fluid Phase Equilibr. 2015. V. 388. P. 50–58.
https://doi.org/10.1016/j.fluid.2014.12.028