


В.Б.Самсонов, Р.Б.Грабова, В.Ш.Сулаберидзе

П-5(339)

-В-5. Эн

Суд. № 8/00

**СТРУКТУРНЫЕ
ИЗМЕНЕНИЯ И ПОВЕДЕНИЕ
ГАЗООБРАЗНЫХ ПРОДУКТОВ
ДЕЛЕНИЯ В ДВУОКСИ УРАНА
ТВЭЛОВ ЯДЕРНЫХ
ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК**



**методика
и техника
облучения**

Н А С Т О Я Ш Е Е И З Д А Н И Е Н И И А Р а

ЯВЛЯЕТСЯ самостоятельной, не всегда дублирующей в последствии в других изданиях ПУБЛИКАЦИЕЙ отдельных оригинальных научных трудов НИИАРа на которую можно ссылаться в других публикациях, указывая при этом авторов, наименование, порядковый номер (НИИАР, П-...), год и место издания (Дмитровград).

ИЗДАЕТСЯ с целью более быстрой или более полной информации по сериям:

1. Ядерные реакторы
2. Методика и техника облучения
3. Радиационное материаловедение
4. Радиохимия
5. Ядерная физика
6. Вычислительная техника и электроника
7. Вычислительная математика и программирование
8. Информатика и управление

ПЕЧАТАЕТСЯ на ротапринтере НИИАРа тиражом 170 экз.

РАССЫЛАЕТСЯ в научные организации, научно-технические библиотеки и отдельным лицам на основе обмена и за плату.

П-5 (339)

Б.Г.Самсонов, Р.Б.Грабова, Г.Ш.Сулаберидзе

СТРУКТУРНЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ И ПОВЕДЕНИЕ
ГАЗООБРАЗНЫХ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ
В ДВУОКСИ УРАНА ТВЭЛС
ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

Димитровград - 1978

Р е ф е р а т

Показано, что структурные изменения в облучаемой двуокиси урана и газовыделение из нее причинно связаны. Изложена феноменологическая теория этих процессов, опирающаяся на известную модель эквивалентных сфер. Показано, что теория газового распухания в процессе деления реализоваться не может. Найдено распределение газовых пузырей по размерам. Показано, что все они имеют примерно равные радиусы величиной $(10 - 15) \cdot 10^{-8}$ см. Выход газообразных продуктов деления определяется диффузионным выходом газовых пузырей.

Расчетные формулы газовыделения учитывают изменение радиуса эквивалентной сферы с выгоранием

$$a_i = a_0 / (K_1 + K_2 v_i)$$

где $K_1 = -0,43$ и $K_2 = 1,16$ для температур топлива от 1300 до 2000 К;

$K_1 = -4$ и $K_2 = 4$ для 1700 - 2000 К;

v_i - выгорание, соответствующее времени t_i ;

a - радиус эквивалентной сферы.

Увеличение пористости топлива связано с уменьшением его плотности в результате уменьшения размеров зерен (эквивалентных сфер) с выгоранием.

1. ВВЕДЕНИЕ

Вопросам структурных изменений и поведению газообразных продуктов деления (ГПД) в UO_2 посвящено много работ. Практически все исследования проводятся после извлечения облученных образцов из реактора. Основаны они на двух методиках: изотермическом или изохронном отжиге облученных образцов UO_2 , в процессе которых изучается кинетика газовыделения, и изучении макро- и микрошлифов поперечных сечений твэлов, облученных до заданных выгораний с целью подсчета пористости, т.е. распухания.

Конечным результатом этих исследований явилась теория газового распухания, которая объясняет наличие наблюдаемой пористости процессом попадания в исходные или образующиеся в процессе облучения мелкие поры атомов ГПД, повышением газового давления в порах и, как следствие, увеличением их размеров из-за притока вакансий. Поскольку предполагается, что газосые поры имеют существенно разные размеры, движутся они с различными скоростями и поэтому могут сближаться, сталкиваться и сливаться, образуя крупные газосые пузыри [1-4]. Именно с этих позиций проведено определение распухания $\Delta V/V$ в зависимости от выгорания путем анализа количества и размеров пор на фотографиях микрошлифов поперечных сечений опытных твэлов [5].

Основной недостаток указанных исследований [1 - 5] заключается в том, что проводились они после прекращения облучения исследуемого материала, т.е. в отсутствие процесса деления ядер урана, когда процесс газового распухания действительно имеет место. При облучении же процесс газового распухания реализоваться не может [6], так как фактор деления вносит принципиальные коррективы в ход газосыделения и микроструктурных изменений UO_2 .

2. ОСНОВНЫЕ ЗАКОНОМЕРНОСТИ ГАЗОВЫДЕЛЕНИЯ ИЗ КЕРАМИЧЕСКОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

Данные работ [7-11] показывают, что по результатам исследования выхода ГПД в процессе облучения топлива можно судить о характере макроструктурных изменений в нем: с начала облучения и до дозы $\sim 2 \cdot 10^{16}$ дел/см³ (при $T = 1400 \pm 100$ К) выход ГПД постепенно растет, затем уменьшается и при дозе $> 5 \cdot 10^{18}$ дел/см³ становится постоянным (рис. 1).

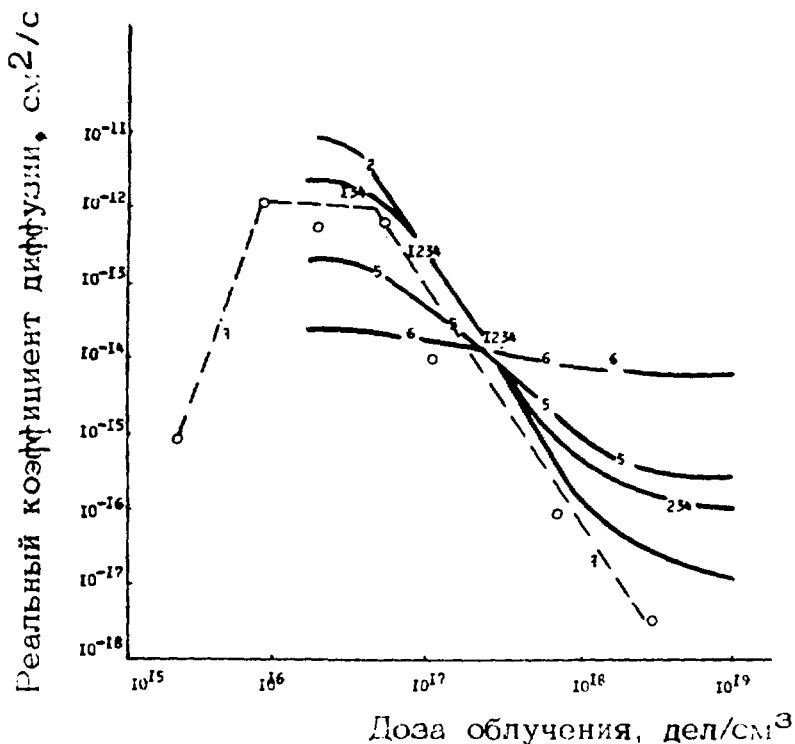


Рис. 1. Изменение реального коэффициента диффузии с дозой облучения: 1 - ксенон-133 в CO_2 ; 2 - ксенон-133 в CS ; 3 - ксенон-133 в CS_2 ; 4 - ксенон-133 в CN ; 5 - ксенон-135 в CO_2 , CS , CS_2 , CN ; 6 - ксенон-138 в CO_2 , CS , CS_2 , CN ; 7 - ксенон-133 в CN

Согласно данным рис. 1 при дозе $\sim 2 \cdot 10^{16}$ дел/см³ значение коэффициента диффузии D_p близко по величине к коэффициенту диффузии вакансий D_v в этих условиях ($D_p \approx D_v$), при дозе $\sim 5 \cdot 10^{17}$ дел/см³ D_p сравнивается с коэффициентом диффузии ГПД в необлученном кристалле ($D_p \approx D_{кр}$), а при $\geq 5 \cdot 10^{18}$ становится постоянным. Самое минимальное значение D_p относится к долгоживущим и стабильным изотопам ГПД.

Во всех периодах облучения D_p имеет температурную зависимость

$$D_p = 6,6 \cdot 10^{-6} \exp(-Q/RT), \quad (1)$$

причем при разных дозах энергия активации различна: $Q = 220$ кДж/моль при $D_p = D_{кр}$ и $Q = 300$ кДж/моль при минимальном (стационарном) значении D_p , которое равно общезвестной величине [12].

Зависимость газовыделения от выгорания при дозах, существенно больших $5 \cdot 10^{18}$ дел/см³ из зон топлива с температурой ниже 2000 К (температура зоны исходной структуры и равновесных зерен), представлена на рис. 2. Первоначальный всплеск давления объясняется выделением и последующим поглощением газов, адсорбируемых двуокисью в процессе изготовления [13].

В течение некоторого времени облучения ГПД из топлива не выходят. Затем начинается медленный, все возрастающий выход, скорость которого впоследствии сравнивается со скоростью образования ГПД. Одновременно с началом заметного выделения ГПД начинается интенсивное растрескивание зерен UO_2 , приводящее к увеличению открытой поверхности, причем оно линейно связано с выгоранием и зависит от температуры (рис. 3). Эти данные подтверждаются прямыми измерениями величины зерна после облучения (точки на рис. 3) [14].

Данные рис. 2 можно представить в несколько измененном виде (рис. 4). До выгорания $V_H \approx 1,2\%$ газ из топлива практически не выходит (выход $< 0,1\%$) и накапливается в количестве $A_H \approx 0,3$ см³/см³ UO_2 . При выгораниях $V_H \approx 3\%$ скорость газовыделения сравнивается со скоростью

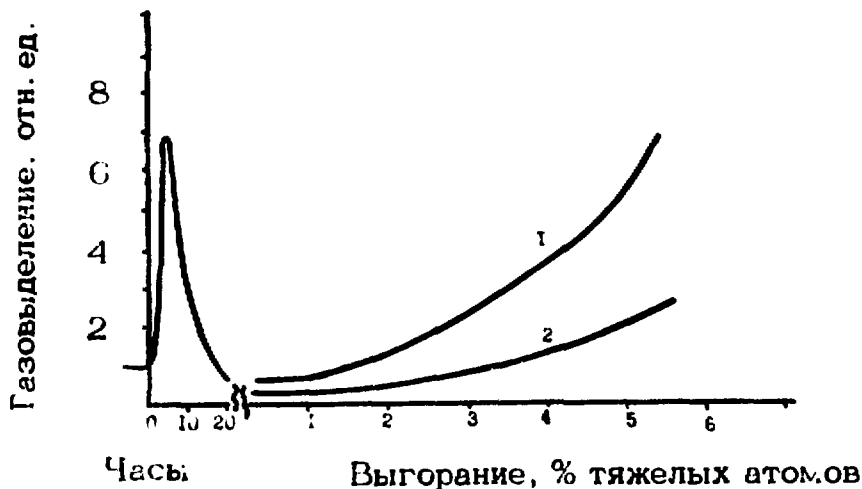


Рис. 2. Выход ГПД из двуокиси урана, находящейся в зоне с температурой ниже 2000К: 1 - количество газа под оболочкой твэла при работе реактора; 2 - то же при остановке

образования. Накопление при этом составляет $A_k \approx (1,5 - 2) \cdot A_H$. Данные по величинам удержанного количества ГПД в двуокиси урана имеют многократное подтверждение [7,15].

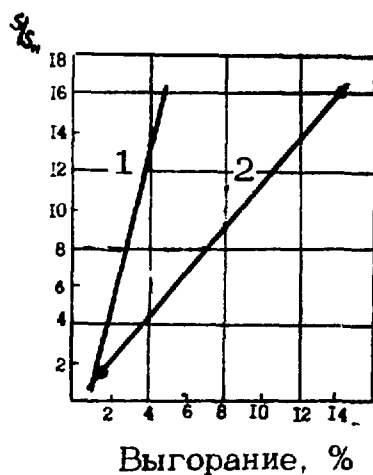


Рис. 3. Относительное изменение поверхности топлива: 1, 2 - данные нашей работы при температурах 1700 - 2000 К и 1300 - 2000 К соответственно; точки - данные работы [14]

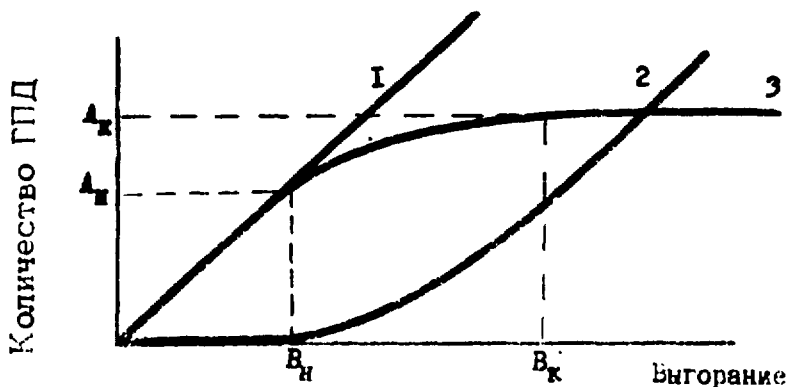


Рис. 4. Поведение ГПД в облучаемой двуокиси урана: 1 – образование ГПД при делении; 2 – выход ГПД из топлива; 3 – накопление ГПД

3. ССЫЛЕННОСТИ СТРУКТУРНЫХ ИЗМЕНЕНИЙ В ОБЛУЧАЕМОЙ ДВУОКИСИ УРАНА

Различие в характере газовыделения при разных дозах позволяет разбить время облучения на четыре периода (рис. 5, табл. 1)

Рост коэффициента диффузии D_p в 1-м периоде свидетельствует об увеличении концентрации вакансий. Достижение кривой $D_p(t)$ максимума при дозе $\approx 2 \cdot 10^{16}$ дел/см³ указывает на насыщение кристалла вакансиями. Аналогичные данные приводятся в работе [16]. Снижение коэффициента диффузии во 2-м периоде объясняется влиянием вакансионных пор-ловушек, которые захватывают атомы ГПД и выводят их из процесса диффузии [17]. Получены оценки среднего радиуса пор-ловушек $r_{пл}$, их концентрации $C_{пл}$ и вероятности захвата ГПД порами-ловушками κ . Во втором периоде κ возрастает от $\approx 10^{-6}$ до $\approx 10^{-2}$ с⁻¹, а в дальнейшем $\kappa = 10^{-2}$ с⁻¹ = const. При дозе $> 5 \cdot 10^{18}$ дел/см³ $r_{пл} \approx 10^{-7}$ см и $C_{пл} \approx 10^{18}$ 1/см³. Время жизни поры-ловушки, не захватившей атомы ГПД, $\approx 2 \cdot 10^5$ с.

Поскольку вероятность захвата κ связана с $C_{пл}$ соотношением

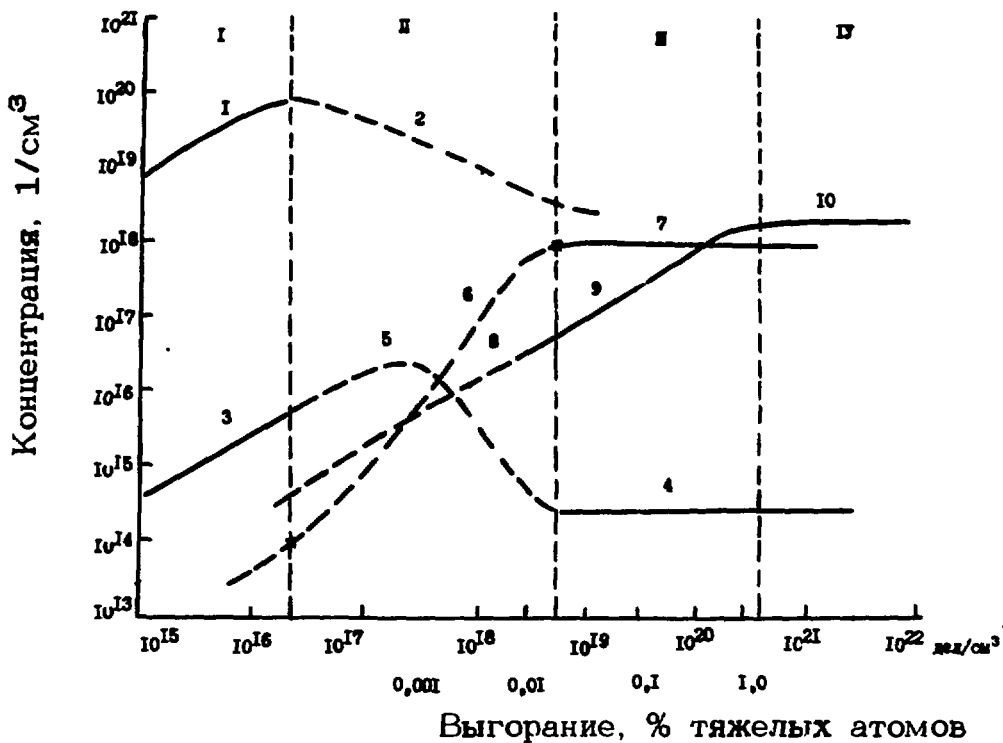


Рис. 5. Зависимость концентраций вакансий, свободных пор-ловушек, атомов ГПД в кристаллической решетке UO_2 , газовых пузырьков в зерне UO_2 от дозы облучения: сплошные линии – расчет; пунктирные – наиболее вероятный ход. (Значения кривых поясняются в тексте)

$$\mathcal{K}(t) = 4\pi D_{кр} \rho_{нл} C_{нл}(t), \quad (2)$$

можно составить представление об изменении $C_{нл}$ в процессе облучения, основываясь на вышеприведенных оценках. Постоянство \mathcal{K} в конце 2-го периода свидетельствует об установлении равновесной концентрации пор-ловушек. Значение $D_{кр}$ из соотношения (1) для температуры 1400 К равно 10^{-14} см²/с. Подставляя эти значения в выражение (2), получим зависимость $C_{нл}(t)$, представленную на рис. 5 (кривые 6 и 7).

Периоды облучения

Период	Доза, дел/см ³	Время, с ($f = 10^{13}$ дел/см ³ с)	Выго- рание	Характеристика периода
1	$0 - 2 \cdot 10^{16}$	$0 - 2 \cdot 10^3$	весьма мало	Увеличение $\Delta\rho$ до мак- симального значения (рис. 1)
II	$2 \cdot 10^{16} - 5 \cdot 10^{18}$	$2 \cdot 10^3 - 5 \cdot 10^5$	мало	Уменьшение $\Delta\rho$ до ми- нимального значения. В конце периода $\Delta\rho =$ $= \text{const}$.
III	$5 \cdot 10^{18} - 2 \cdot 10^{20}$	$5 \cdot 10^5 - 2 \cdot 10^7$	до 1,2%	Отсутствие газовыделе- ния. В конце периода начало выхода ГПД и растрескивание
IV	$> 2 \cdot 10^{20}$	$> 2 \cdot 10^7$	$> 1,2\%$	Газовыделение и рас- трескивание

В работе [17] также показано, что $\approx 5\%$ пор-ловушек захватывают атомы ГПД, превращаясь в газовые пузыри. Естественно предположить, что весь задержанный в топливе газ размещается в этих внутризеренных пузырях. Используя данные по накоплению газа в 3-м периоде, можно оценить концентрацию газовых пузырей $C_{гп}$ и их размеры ρ_0 , основываясь на следующих упрощающих предположениях:

- . газ подчиняется уравнению состояния реального газа;
- . давление газа в пузыре уравновешено поверхностным (лапласовским) натяжением;
- . все пузыри имеют одинаковый радиус ρ_0 .

Подставив в уравнение состояния реального газа

$$p(V - nb) = nkT \quad (3)$$

выражение для объема пузыря

$$V = \frac{4}{3} \pi \rho_0^3 \quad (4)$$

и давление P по условию лапласовского равновесия

$$P = 2\sigma_L / \rho_0, \quad (5)$$

получим выражение для количества газа в пузыре:

$$n = \frac{8\pi \rho_0^2 \sigma_L}{3kT (1 + 2\sigma_L b / kT \rho_0)} \quad (6)$$

Здесь σ_L - поверхностное натяжение, 1 Н/м ;

k - постоянная Больцмана, $1,38 \cdot 10^{-16}$ эрг/К;

b = $50 \text{ см}^3/\text{моль} \approx 8,5 \cdot 10^{-23} \text{ см}^3/\text{атом}$ (для ксенона).

С другой стороны, принимая во внимание линейный характер накопления газа для доз $V < V_H$, можно выразить n через дозу облучения V :

$$n = N_{\Gamma} / C_{\Gamma n} = \frac{(A_n / V_n) V \gamma N_A}{V_M C_{\Gamma n}}, \quad (7)$$

где N_{Γ} - количество накопленного газа;

N_A - число Авогадро, $6,025 \cdot 10^{23}$ 1/моль;

γ - плотность топлива, $10,5$ г/см³.

Связывая газовое распухание (в общепринятом смысле) при дозе облучения V с объемом, занимаемым рассматриваемой системой пузырей,

$$\left(d \frac{\Delta V}{V} / dV \right)_p V = \frac{4}{3} \pi \rho_0^3 C_{\Gamma n} \quad (8)$$

и учитывая соотношения (6) и (7), получим

$$\rho_0 / \rho^* = \frac{\left(d \frac{\Delta V}{V} / dV \right)_p V}{N_{\Gamma} V (1 + \rho_0 / \rho^*)}, \quad (9)$$

где
$$\rho^* = \frac{25 \lambda V}{k T}.$$

Подставляя в уравнение (9) численные значения величин, соответствующих дозе $V = V_n$, получим

$$\rho_0 = \left[\frac{\left(d \frac{\Delta V}{V} / dV \right)_p}{0,52 \cdot 10^{-2}} - 1 \right] \rho^*. \quad (10)$$

Здесь и далее $\Delta V/V$ относим к 1 см³, т.е. $\Delta V/V = \Delta V$.

Как уже отмечалось, общепризнанной величиной газового распухания является $\left(d \Delta V / dV \right)_p \approx 0,72\%$ на 1% выгорания. Поскольку эта величина может быть обусловлена не только закрытой, но и открытой пористостью, при подстановке ее в уравнение (10) получим завышенное значение ρ_0 , т.е. для среднего размера газового пузыря

$$\rho_0 \leq 0,25 \frac{25 \lambda v}{k T}$$

Температура топлива в зоне равноосных зерен составляет обычно (для реакторов типа ВВЭР-1000 и РБМК) 1300 - 2000 К. Полагая $T \approx 1600$ К, получим $\rho_0 \leq 1,8 \cdot 10^{-7}$ см.

Если $\rho_0 \approx 10^{-7}$ см, то согласно уравнениям (6) и (7) $n \approx 30$ и $C_{гн} \approx 2 \cdot 10^{18}$ 1/см³. Итак, при выгорании $v_n \approx 1,2\%$ в двуокиси урана накапливаются мелкие газовые пузыри со средним радиусом $\approx 10^{-7}$ см в количестве $\approx 2 \cdot 10^{18}$ 1/см³. Средний радиус поры-ловушки в 3-м периоде имеет ту же величину ($\rho_{нл} \approx 10^{-7}$ см). Это свидетельствует о том, что увеличение объема облучаемого топлива в 3-м периоде определяется не ростом газовых пузырей, а их накоплением.

Назовем процесс увеличения объема топлива до выгорания v_n "квазитвердым распуханием". Смысл такого определения в следующем. Считается, что "газовое распухание" может быть сдержано внешним давлением, например, прочной оболочкой твэла. Действительно, если бы наблюдаемые обычно поры были закрытыми, то давление в них было бы невелико. В пузыре радиусом $\rho \approx 10^{-4}$ см согласно соотношению (6) равновесное давление равно 2 МПа. Создание в оболочке ϕ С,95 x 0,065 см (твэл ВВЭР) напряжения ≈ 13 МН/см² оказывает противодействие такой же величины. Равновесное же давление в пузыре радиусом 10^{-7} см равно 2000 МПа. Соответствующее сдерживающее напряжение в оболочке создать невозможно. Увеличение объема топлива из-за накопления газовых пузырей размером 10^{-7} см не может быть сдержано практически осуществимым внешним давлением и происходит так же, как увеличение объема, из-за накопления твердых осколков деления.

4. ХАРАКТЕР РАЗВИТИЯ ГАЗОВОЙ ПОРИСТОСТИ В ОБЛУЧАЕМОЙ ДВУОКСИ УРАНА

Спишем процесс развития газовых пузырей в облучаемой двуокиси урана с некоторым приближением. Характер процесса

в данном случае определяется актами деления ядер урана, которые приводят к образованию вакансий, вакансионных кластеров на треках осколков деления [16] и атомов ГПД. При достаточном пересыщении кристалла вакансиями кластеры (поры-ловушки) стабилизируются и, захватывая атомы ГПД, превращаются в газовые пузыри. Последние растут в соответствии с балансом вакансий и атомов газа, мигрируют по кристаллу и, достигнув границы зерна, выходят из его объема. Эти процессы можно описать уравнениями:

баланса вакансий, создаваемых облучением,

$$\frac{\partial C_B}{\partial t} = f K_B - \varphi(t) C_B, \quad (11)$$

баланса атомов ГПД с учетом их выхода из зерна и уходом в пузыри

$$\frac{\partial C_{кр}}{\partial t} = D_{кр} \Delta C_{кр} + f \gamma - \kappa(t) C_{кр}, \quad (12)$$

непрерывности для функции распределения по размерам газовых пузырьков*).

$$\frac{\partial f^n}{\partial t} + D_{гп} \Delta f^n + \frac{\partial}{\partial \rho} (\nu_{\rho} f^n) = \Psi(\rho, t). \quad (13)$$

В этих уравнениях

$C_{кр}(r, t), C_B(t)$ — концентрация атомов ГПД и вакансий соответственно;

γ — выход всех стабильных ГПД на деление ($\gamma \approx 0,25$ [12]);

f — плотность делений, дел/(см³·с);

*). Слиянием пор пренебрегаем.

K_v - вероятность образования вакансий в одном акте деления, 1/дел;

φ - вероятность ухода вакансий в стоки, s^{-1} ;

$f^n(\rho, t, \vec{r})$ - функция распределения газовых пузырей по размерам в момент времени t в точке \vec{r} ;

$v_p = \frac{d\rho}{dt}$ - скорость роста газового пузыря, см/с;

D_{gn} - коэффициент диффузии газовых пузырей, cm^2/s ;

Ψ - интенсивность образования зародышей газовых пузырей.

Если предположить, что все зародыши имеют одинаковый размер ρ_0 , то

$$\Psi(\rho, t) = \Psi(t) \delta(\rho - \rho_0). \quad (13')$$

Решение системы (11) - (13) на всем интервале доз связано со значительными математическими трудностями [1, 18]. Мы попытаемся упростить общую задачу, используя данные по газовой выделению.

В 1-м периоде можно предположить, что величина φ определяется стоками, существовавшими в двуокиси до облучения, т.е. $\varphi = const$. Действительно, в этом периоде $C_{gn} \ll 10^{14}$ 1/см³ и, следовательно, $C_{gn} \ll 10^{14}$ 1/см³, в то время как по результатам электронно-микроскопических исследований концентрация дислокационных петель в необлученной UO_2 равна $\sim 3 \cdot 10^{14}$ 1/см³ [16]. При такой концентрации стоков длина пробега вакансий $l_v \approx 3 \cdot 10^{-5}$ см. Поскольку $\varphi \approx (D_v/l_v^2)^{1/2}$, полагая $D_v \approx 10^{-12}$ см²/с, получим $\varphi \approx 10^{-3}$ 1/с. Оценим $K_v \approx 10^4$ 1/дел, что соответствует числу стабильных пар, создаваемых одним осколком деления в керамическом топливе [19].

Из решения уравнения (11) в 1-м периоде.

$$C_v = \frac{f K_v}{\varphi} (1 - \exp(-\varphi t)) \quad (14)$$

следует, что время насыщения кристалла вакансиями $\tau \approx \psi^{-1} \approx 10^3$ с и максимальное пересыщение вакансиями $C_{kr}^{max} \approx fkv/\psi \approx 10^{20}$ 1/см³.

В последующих периодах облучения концентрация стоков становится больше, поэтому концентрация вакансий должна понижаться. С учетом данных работы [16] (для 2 и 3-го периодов) зависимость C_{kr} от дозы облучения представлена кривыми 1 и 2 на рис.5. Положение максимума на кривой совпадает с максимумом на кривой Δp (рис. 1).

Чтобы учесть выход атомов ГИД через поверхность зерна следует решать уравнение (12) при нулевых граничных условиях: решение, полученное при условии $C_{kr}(0) = 0$ и усредненное по объему зерна, можно записать

$$C_{kr}(t) = \frac{6fy}{\pi^2} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{m^2} \int_0^t \exp\left(\int_0^t \chi(t') dt' + \frac{\pi^2 m^2 D_{kr}}{a^2} t\right) dt \times$$

$$\times \exp\left(-\frac{\pi^2 m^2 D_{kr}}{a^2} t - \int_0^t \chi(t') dt'\right), \quad (15)$$

где a - радиус сферы (при исходной плотности $\gamma = 10,5$ г/см³, $a = 10^{-2}$ см).

Время, когда начинается заметный выход газа из зерна, определяется величиной

$$\tau \approx a^2 / \pi^2 D_{kr} \approx 10^9 \text{ с.}$$

Поскольку в 1-м периоде $t/\tau \ll 1$ и $\chi t \ll 1$.

$$C_{kr}(t) = fy t. \quad (16)$$

Во 2-м периоде облучения χ меняется от $\approx 10^{-6}$ до 10^{-2} с⁻¹. Оценки показывают, что в этом периоде $C_{kr}(t)$ достигает максимума, который лежит в районе доз $3 \cdot 10^{17} - 10^{18}$ дел/см³, при этом $C_{kr}^{max} \approx 10^{16}$ 1/см³. В конце 2-го периода ($t_0 \approx 10^5$ с) $\pi^2 D_{kr}/a < \chi$, поэтому можно пренебречь

выходом газа через поверхность зерна по сравнению с уходом его в поры-ловушки, т.е. в уравнении (12) положить $D_{кр} \Delta C_{кр} = 0$. В этом случае при начальном условии $C_{кр}(t = t_0) = C_{кр}^0$ ($C_{кр}^0 > fy/\chi$) решение (12) можно записать в виде

$$C_{кр}(t) = \frac{fy}{\chi} \left[1 + \left(\frac{\chi C_{кр}^0}{fy} - 1 \right) e^{-\chi(t-t_0)} \right]. \quad (17)$$

Согласно выражению (17) время установления равновесной концентрации $C_{кр}(t)$ определяется условием

$$\chi(t-t_0) - \ln \left(\frac{\chi C_{кр}^0}{fy} - 1 \right) \approx 1.$$

Полагая $C_{кр}^0 \approx 10^{15}$ 1/см³, получим $(t-t_0) \approx 10^2$ с, что много меньше t_0 , т.е. в конце 2-го периода концентрация $C_{кр}(t)$ меняется квазистационарно. Поэтому в 3-м периоде справедливо соотношение

$$C_{кр} = fy/\chi \approx 2,5 \cdot 10^{14}. \quad (17')$$

Зависимость $C_{кр}(t)$ представлена кривыми 3, 4, 5 на рис. 5.

Итак, можно констатировать, что в кристаллической решетке облучаемой UO_2 концентрация атомов ГПД находится в пределах $10^{14} - 10^{16}$ 1/см³. При известной концентрации $C_{кр}$ можно определить скорость роста газовых пузырьков v_p , которая входит в уравнение (13). Если рост пузырьков происходит диффузионным путем так, что приток вакансий скоррелирован с притоком атомов газа, то согласно работе [1]

$$v_p = \frac{3}{4} \cdot \frac{D_{кр} kT}{b_L} \cdot C_{кр}(t) \Omega^{-1}(p), \quad (18)$$

где $\Omega(p)$ - член, учитывающий тот факт, что газ ведет себя как реальный

$$\Omega(p) = \frac{(1 + 2b_L v / p kT)^2}{(1 + 3b_L v / p kT)}. \quad (19)$$

Интенсивность образования зародышей газовых пузырьков $\Psi(t)$ можно определить, полагая, что зародышами являются поры-ловушки, которые стабилизируются, захватывая атомы ГПД. Скорость поступления атомов ГПД в пузырь определяется соотношением

$$dn/dt = 4\pi \rho_{nl} A_{kr} C_{kr}(t) . \quad (20)$$

Если n - число атомов газа в зародыше, то в единицу времени образуется $\frac{C_{nl}}{n} \frac{dn}{dt}$ зародышей:

$$\Psi(t) = \frac{4\pi \rho_{nl} A_{kr} C_{kr}(t) C_{nl}(t)}{n}$$

или с учетом уравнения (2)

$$\Psi(t) = \chi(t) C_{kr}(t) / n . \quad (21)$$

Скорость выхода газовых пузырей из зерна определяется коэффициентом диффузии A_{gn} . Если миграция пузырей в матрице UO_2 обусловлена диффузионными потоками вакансий в объеме матрицы, то согласно работе [4]

$$A_{gn} = 3\Gamma A_c \omega / 2\pi F \rho_0^3 , \quad (22)$$

где ω - атомный объем, $3 \cdot 10^{-24}$ см³;

$$F \approx 1, \Gamma \approx 1;$$

A_c - коэффициент самодиффузии атомов кристалла UO_2 : по величине он близок к коэффициенту диффузии атомов ГПД [12], т.е. $A_c \approx A_{kr} \approx 10^{-14}$ см²/с.

Согласно выражению (22) при $\rho_0 = 10^{-7}$, коэффициент диффузии $A_{gn} \approx 10^{-17}$ см²/с. Если миграция пузырей осуществляется путем поверхностной диффузии, для A_{gn} получаются оценки того же порядка. Следовательно, коэффициент диффузии пузырей

($\rho_0 = 10^{-7}$ см) на три порядка ниже коэффициента диффузии атомов газа в необлученном кристалле.

Очевидно, что в 1-3-м периодах, выход газовых пузырьков из зерна незначителен ($r^2 D_{гн} / a^2 \ll 1$), поэтому в формуле (13) можно положить $D_{гн} \Delta f^n \approx 0$. При этом с учетом (18) и (13') уравнение (13) можно записать в виде

$$\frac{\partial f^n}{\partial t} + \beta(t) \rho_0 \frac{\partial}{\partial \rho} (f^n \Omega^{-1}) = \Psi(t) \delta(\rho - \rho_0). \quad (23)$$

где $\beta(t) = \frac{3}{4} \cdot \frac{kT}{b_n \rho_0} \cdot A_{кр} C_{кр}(t)$.

В приложении 1 показано, что для $\alpha \bar{\beta} t \ll 1$ решение уравнения (23) можно записать в виде

$$f(\rho, t) = \begin{cases} \Omega(\rho) \frac{\Psi}{\beta \rho_0} & \text{при } \rho_0 \leq \rho \leq \rho_0 \left(1 + \frac{2}{3} \bar{\beta} \alpha t\right) \\ 0 & \text{в остальных случаях,} \end{cases} \quad (24)$$

где $\alpha = 2 b_n v / kT \rho_0$.

Полагая, что размер зародышей определяется размерами пор-ловушек $\rho_0 \approx 10^{-7}$ см, убеждаемся, что в 3-м периоде, действительно, $\alpha \bar{\beta} t \ll 1$ ($\alpha \approx 6$, $\beta \approx 10^{-9}$ с $^{-1}$) и функция распределения должна иметь вид (24). Теперь можно найти временную зависимость концентрации газовых пузырей.

Поскольку

$$C_{гн}(t) = \int_{\rho_0}^{\rho_{max}} f^n(\rho, t) d\rho,$$

с учетом (24) и (19) для $\alpha \bar{\beta} t \ll 1$ получим

$$C_{гн}(t) = \frac{\Psi}{\beta \rho_0} \int_{\rho_0}^{\rho_0 \left(1 + \frac{2}{3} \alpha \bar{\beta} t\right)} \Omega(\rho) d\rho \approx \Psi t, \quad (25)$$

откуда следует, что в 3-м периоде концентрация газовых пор линейно возрастает со временем. Для оценки Ψ воспользуемся соотношением (21). Так как на уровне лапласовского равновесия из (6) число атомов газа в пузырьке ≈ 30 , то можно полагать, что для зародыша $n \approx 10$. Тогда в 3-м периоде $\Psi \approx 10^{11}$ л/с. Зависимость (25) представлена на рис. 5 кривой 9. Пунктиром показан предполагаемый ход $C_{гп}(t)$ во 2-м периоде.

Из соотношений (24) и (25) следует, что в течение 3-го периода функция распределения пузырей по размерам меняется незначительно. Это хорошо согласуется с выводами, сделанными в конце разд.2.

Итак, в облучаемой двуокиси урана благодаря установлению высокой концентрации пор-ловушек (зародышей) равновесная концентрация атомов ГПД в кристаллической решетке такова, что скорость роста газовых пузырей незначительна ($V_p \approx 10^{-15}$ см/с) и развитие пористости сводится к накоплению мелких газовых пузырей.

Следует отметить, что разбиение времени облучения на периоды позволило выявить некоторые специфические особенности дозовых зависимостей $C_{лм}, C_{лв}, C_{лр}, C_{гп}$. Это в свою очередь позволило выявить характер развития пористости в 3-м периоде.

Кроме того, представление о сложном временном характере зависимостей этих величин, упрощенно показанное на рис. 5, позволяет понять причины многочисленных расхождений в результатах по изучению диффузии в облученных образцах. Облучение образцов до различных доз и при различных температурах приводило к тому, что соотношения концентраций пор-ловушек, пузырьков и атомов в кристаллической решетке могло быть произвольным. Если затем изучать выход ГПД из таких образцов послереакторными методами, то закономерности выхода будут всегда определяться объемной диффузией, но предэкспоненциальный множитель и энергия активации диффузии могут существенно различаться. Если же облучение образцов проводить до доз, характерных для 4-го периода, то выход стабильных ГПД будет иметь величину энергии активации 300 кДж/моль.

В заключение следует заметить, что эффект газового распухания (в обычном понимании) из-за попадания атомов ГПД в крупные исходные поры рассмотрен в работе [6], где показана

невозможность его осуществления. Кроме того, в начальный период облучения происходит доспекание двуокиси до почти теоретической плотности.

5. ДОСПЕКАНИЕ И РАСТРЕСКИВАНИЕ ДВУОКИСИ УРАНА

Для определения доспекания и растрескивания облучаемой двуокиси урана, а также для сравнения наших данных с результатами других авторов удобнее использовать решение уравнения диффузии в виде относительного выхода ГПД:

$$F = 1 - \frac{6a^2}{90\bar{D}_p t} + \frac{6a^2}{\pi^4 \bar{D}_p t} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} \exp\left(-\frac{\pi^2 n^2 \bar{D}_p t}{a^2}\right). \quad (26)$$

Значение усредненного по разным температурам топлива коэффициента диффузии \bar{D}_p определяется по соотношению [12]

$$(\bar{D}_p)^{1/2} = \frac{1}{6} \left[(D_p(T_{max}))^{1/2} + 4(D_p(T_{cp}))^{1/2} + (D_p(T_{min}))^{1/2} \right] \quad (27)$$

где $D_p(T_{max})$, $D_p(T_{cp})$ и $D_p(T_{min})$ рассчитываются по соотношению (1) соответственно для максимальной, средней и минимальной температур, причем

$$T_{cp} = (T_{max} + T_{min})/2. \quad (28)$$

Выход газа определяли с помощью датчиков количества газа [8], имеющих порог срабатывания при выходе в систему твэл – датчик некоторого минимального количества газа m_{min} . Первое срабатывание происходит при выгорании V_H . Поскольку практически весь образовавшийся газ (99,9%) находится в топливе,

$$m_{min} = F(V_H) f y t. \quad (29)$$

Откуда

$$F(B_H) = m_{\min} / f_y f. \quad (30)$$

Следовательно, при постоянной чувствительности датчика (m_{\min}) для малых относительных выходов требуется длительное время накопления газа в системе и наоборот.

Значения F , рассчитанные по соотношению (26) для различных начальных значений радиусов зерен при реальных условиях экспериментов [8], приведены на рис. 6.

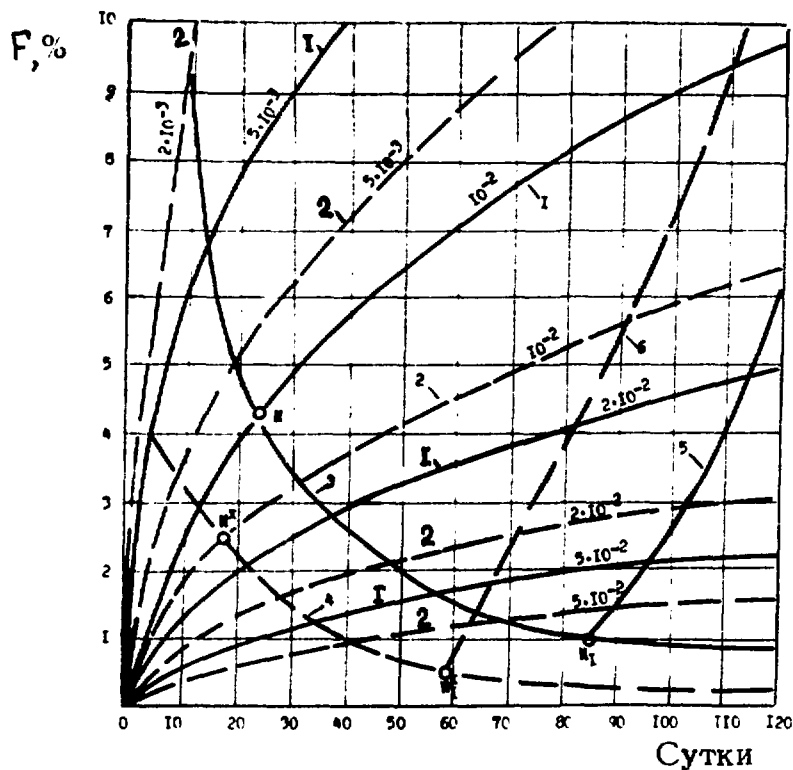


Рис. 6. Зависимость газовыделения от времени облучения на начальной стадии: 1, 2* - расчет по соотношениям (26) - (28) при температурах 1700 - 2000 К и 1300 - 2000 К соответственно; 3, 4 - расчет времени срабатывания датчика (30) с учетом соотношений (26) - (28) для тех же температур; 5, 6 - экспериментальные данные по газовыделению для тех же температур

Пересечение кривых серии 1 с кривой 3 и кривых серии 2 с кривой 4 определяет (на оси абсцисс) время, при котором должен сработать датчик, при исходном радиусе сферы, отвечающей своей кривой.

Известно, что между плотностью топлива и радиусом сферы есть определенная связь (модель эквивалентных сфер), представленная на рис. 7. Исходная плотность в твэлах Д и ГД была $10,5 \text{ г/см}^3$, поэтому радиус исходного зерна составлял 10^{-2} см .



Рис. 7. Зависимость радиуса эквивалентной сферы и истинной поверхности от плотности топлива [12]

При таком радиусе датчики должны были сработать через 15 (точка M^* на рис. 6) и 25 (точка M на рис. 6) суток облучения. Однако, как показывает пересечение экспериментальных кривых 5 и 6 с кривыми 3 и 4, датчики сработали через 60 и 90 суток. Следовательно, относительный выход оказался ниже, чем это следует из соотношения (26), в котором всего два параметра, от которых зависит временной ход F : коэффициент диффузии D_p и радиус зерна a . Очевидно,

что значения D_p ниже отвечающего энергии активации 300 кДж/моль быть не может. Стало быть, уменьшение F может произойти только из-за увеличения радиуса зерна.

Точки пересечения экспериментальных кривых 5 и 6 (рис. 6) с кривыми 3 и 4 показывают, что при такой малой величине F величина радиуса сферы должна быть $\approx 10^{-1} \text{ см}$, т.е. плотность должна быть почти теоретической. Следовательно, в начальный период облучения происходит процесс радиационно-стимулированного дospelекания двуокиси урана

до почти теоретической плотности с увеличением радиуса сферы до 10^{-1} см. Подобное явление в последнее время интенсивно изучается [20-22], поскольку предполагается, что при подобном доспекании происходит усадка столба топлива, которая может привести к смятию оболочки твэла. Полученные данные по глубине доспекания хорошо коррелируют с результатами указанных работ.

Явление доспекания позволяет более точно определить зависимость растрескивания от выгорания. На рис. 8 в крупном масштабе приведены данные по величинам растрескивания двуокиси. В данном случае на оси ординат отложено не изменение радиуса зерна α , относительно его исходного значения α_0 , а отношение изменения поверхности зерен к исходной поверхности, т.е. S/S_0 . Известно, что в модели эквивалентных сфер

$$\alpha = \frac{3}{S} \quad (\text{доля теоретической плотности}). \quad (31)$$

На рис. 8 при выгораниях, больших $V_H \approx 1,2\%$, нанесены две прямые, перенесенные с рис. 3. Для выгораний ниже $V_H \approx 1,2\%$ представлены данные, снятые с рис. 6 в точках пересечения экспериментальных кривых газовыделения 5 и 6 с кривыми теоретического выхода 1 и 2 для соответствующего радиуса зерна. Эти точки с некоторым приближением могут характеризовать кинетику растрескивания в начальном периоде газовыделения. Кинетика доспекания в подобных экспериментах не может быть выявлена, поэтому она условно представлена пунктирными линиями

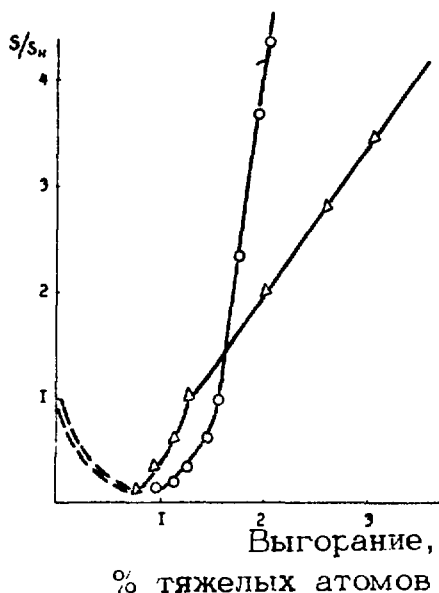


Рис. 8. Доспекание и растрескивание топлива на начальной стадии облучения при температурах, К:
 o - 1700 - 2000;
 Δ - 1300 - 2000

На рис. 9 и 10 приведены результаты расчетов относительного газовыделения от времени для разных исходных значений радиусов по соотношению (26), а также приведены экспериментальные кривые выхода ГПД при температурах 1700 – 2000 К (твэлы Д) и 1300 – 2000 К (твэлы ГД) из работы [8]. Видно, что результаты расчетов и экспериментов существенно различаются. Однако, принимая во внимание факт растрескивания зерен UO_2 во время облучения, можно понять причину этого различия. Вначале выход меньше рассчитываемых при постоянном радиусе зерна значений из-за доспекавания, а затем резко возрастает и превышает расчетные значения из-за растрескивания. Эти обстоятельства необходимо учитывать при решении уравнений диффузии путем введения переменных граничных условий, если обработку результатов по-прежнему проводить в рамках модели эквивалентных сфер.

6. МЕХАНИЗМ ВЫХОДА ГПД ИЗ ЗЕРНА ДВУОКИСИ УРАНА

Известно, что газовые пузыри в твердом теле не остаются неподвижными, а могут перемещаться под действием температурного градиента, а также путем диффузии [4]. Оценки показывают, что пузыри столь малого радиуса (до $\approx 10^{-7}$ см) в поле температурного градиента имеют весьма малые по сравнению с диффузионным движением скорости. Следовательно, можно полагать, что выход ГПД из зерна осуществляется не только диффузией их атомов, но и диффузией атомов в составе газового пузырька.

При диффузии пузырьков с радиусом $R_0 \approx 10^{-7}$ см $D_{гр} \approx 10^{-3} D_{кр}$. Отношение коэффициентов диффузии для энергий активации 220 и 300 кДж/моль, рассчитанное по соотношению (1), дает величину $\approx 10^{-3}$ для температуры 1600 К. Энергия активации 220 кДж/моль соответствует диффузии атомов газа в кристаллической решетке. Полученная оценка позволяет утверждать, что энергия активации 300 кДж/моль соответствует диффузии газовых пузырей.

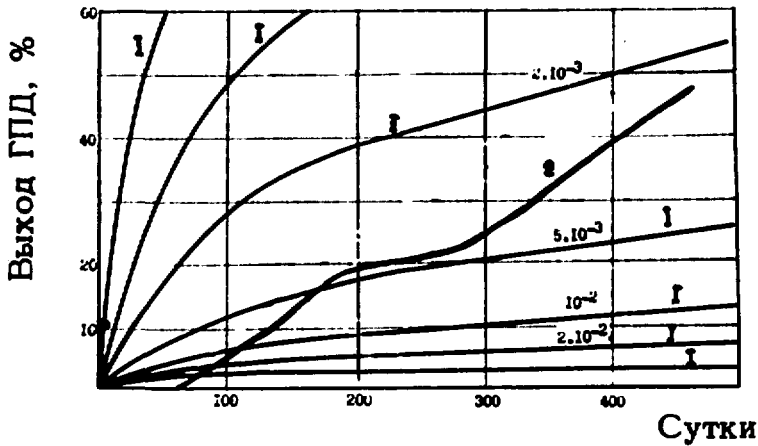


Рис. 9. Зависимость относительного выхода ГПД от времени при температуре 1300 - 2000 К: 1 - модель эквивалентных сфер; 2 - эксперимент

В том, что выход ГПД осуществляется диффузией пузырей, можно убедиться следующим образом. Без учета захвата атомов ГПД пузырями выход их из зерна будет определяться уравнением

$$\partial C_r / \partial t = f_y - A_p \Delta C_r, \quad (32)$$

где C_r - концентрация ГПД в двуокиси урана, $1/\text{см}^3$.

Выход газовых пузырей в 3 и 4-м периодах будет определяться уравнением

$$\partial C_{gn} / \partial t = \kappa C_{gp} / n - A_{gn} \Delta C_{gn}, \quad (33)$$

где $\kappa C_{gp} / n$ - скорость образования газовых пузырей, $1/\text{см}^3 \text{с}$,

C_{gn} - концентрация газовых пузырей, $1/\text{см}^3$.

Поделим обе части уравнения (32) на n и получим ($C_r/n = C_{gn}$):

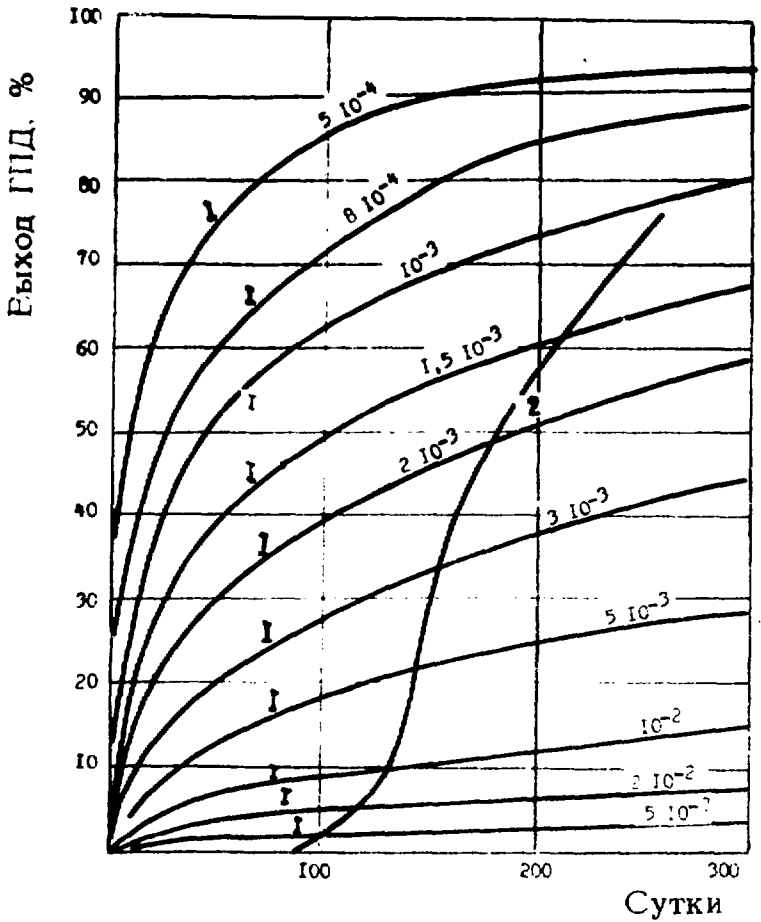


Рис. 10. Зависимость относительного выхода ГПД от времени при температуре 1700 - 2000 К: 1 - модель эквивалентных сфер; 2 - эксперимент [8]

$$\frac{\partial C_{гн}}{\partial t} = \frac{f_y}{n} - D_p \Delta C_{гн} . \quad (34)$$

Но из уравнения (12) следует, что для 3 и 4-го периодов $\alpha C_{кр} = f_y$. Следовательно, уравнение (32) преобразуется в уравнение (33), а $\Delta_{гн} = \Delta_p$, т.е. наблюдаемый во всех экспериментах выход ГПД есть в действительности выход ГПД путем диффузии газовых пузырей.

Оценим величину выхода ГПД в виде отдельных атомов по сравнению с выходом их в пузырьках в 3-м периоде облучения. Потоки атомов газа q_r и газа в пузырьках q_{rn}^r через границу зерна описываются соотношениями:

$$\left. \begin{aligned} q_r &= -D_{kr} \nabla C_{kr} 4\pi a^2, \\ q_{rn}^r &= -D_{rn} \nabla C_{rn} 4\pi a^2 n \end{aligned} \right\}. \quad (34)$$

Их отношение при $\nabla C_{kr} / \nabla C_{rn} \approx \frac{C_{kr}}{C_{rn}}$ равно

$$\frac{q_r}{q_{rn}^r} = \frac{D_{kr} C_{kr}}{D_{rn} C_{rn}} \cdot \frac{1}{n} \approx \frac{10^{-14} \cdot 10^{14}}{10^{-17} \cdot 10^{18}} \cdot \frac{1}{30} = \frac{1}{300}, \quad (35)$$

т.е. выход газа за счет диффузии отдельных атомов пренебрежимо мал. Следовательно, для определения выхода газа в 3 - 4-м периодах необходимо решать уравнение (34) с переменными граничными условиями (см. разд.4).

Общий вид решения в этом случае имеет сложный вид, в котором не совсем очевидна взаимосвязь параметров. Поэтому мы упростили задачу, считая, что размер зерен меняется ступенчатым образом. В этом случае уравнение (34) решается для каждой ступеньки с постоянным значением a , но в качестве начального условия берется концентрация газовых пузырьков в зерне, рассчитанная в предыдущем временном интервале. Для i -й ступеньки решение запишем

$$\begin{aligned} C_{rn}^i(t) &= \frac{6}{\pi^2} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{m^2} \exp\left[-\frac{\pi^2 m^2 D_{rn}}{a_i^2} (t-t_i)\right] C_{rn}^{i-1}(t=t_i) + \\ &+ \frac{6fy}{\pi^2 n} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1 - \exp\left[-\frac{\pi^2 m^2 D_{rn}}{a_i^2} (t-t_i)\right]}{\pi^2 m^4 D_{rn} / a_i^2}. \end{aligned} \quad (36)$$

Для относительного выхода решение можно записать

$$F_i(t) = 1 - \frac{6q_i^2}{90D_{rn}t} + \frac{6q_i^2}{\pi^4 D_{rn}t} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{\exp\left[-\frac{\pi^2 m^2 D_{rn}(t-t_i)}{q_i^2}\right]}{m^4} - \frac{6}{\pi^2} \cdot \frac{C_{rn}^{i-1}(t-t_i)}{f_{yn}t} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{\exp\left[-\frac{\pi^2 m^2 D_{rn}(t-t_i)}{q_i^2}\right]}{m^2}. \quad (37)$$

Как и следовало ожидать, соотношения (36) и (37) имеют характерный для модели эквивалентных сфер вид.

Проведем расчет изменения концентрации газовых пузырей по соотношению (36) для нескольких значений коэффициентов диффузии, соответствующих температурам, близким к экспериментальным. При этом значения радиусов зерна будем брать с рис. 3 и 8 для соответствующих температур. Результаты расчета представлены на рис. 11 и 12. Плотность делений в этих расчетах равна $3 \cdot 10^{13}$ дел/(см³·с), т.е. близкая к плотности делений в двуокиси твэлов реакторов ВВЭР и РБМК.

Видно, что результаты расчета и экспериментов хорошо согласуются, при этом нужно отметить, что оба экспериментальных результата несколько сдвинуты по времени относительно расчетных кривых. Это можно объяснить тем, что в расчетах заложена систематическая ошибка, связанная с весьма приблизительными данными о начале растрескивания и о кинетике растрескивания в начальном периоде газовой выделении. Сравнивая расчетные и экспериментальные результаты, тем не менее, можно утверждать, что кинетика процесса газовой выделении выявлена достаточно достоверно.

Задержка в газовой выделении в твэлах ГД связана с тем, что после 200 сут облучения реактор работал на мощности $\approx 75\%$ по причине, не связанной с испытаниями твэлов [8].

Подставляя температуры топлива в экспериментах с твэлами ГД 1300 - 2000 К и твэлами Д - 1700 - 2000 К в соотношения (27) и (28), получим соответственно $D_{rn} = 0,8 \cdot 10^{-14}$ и $D_{rn} = 3,4 \cdot 10^{-14}$ см²/с.

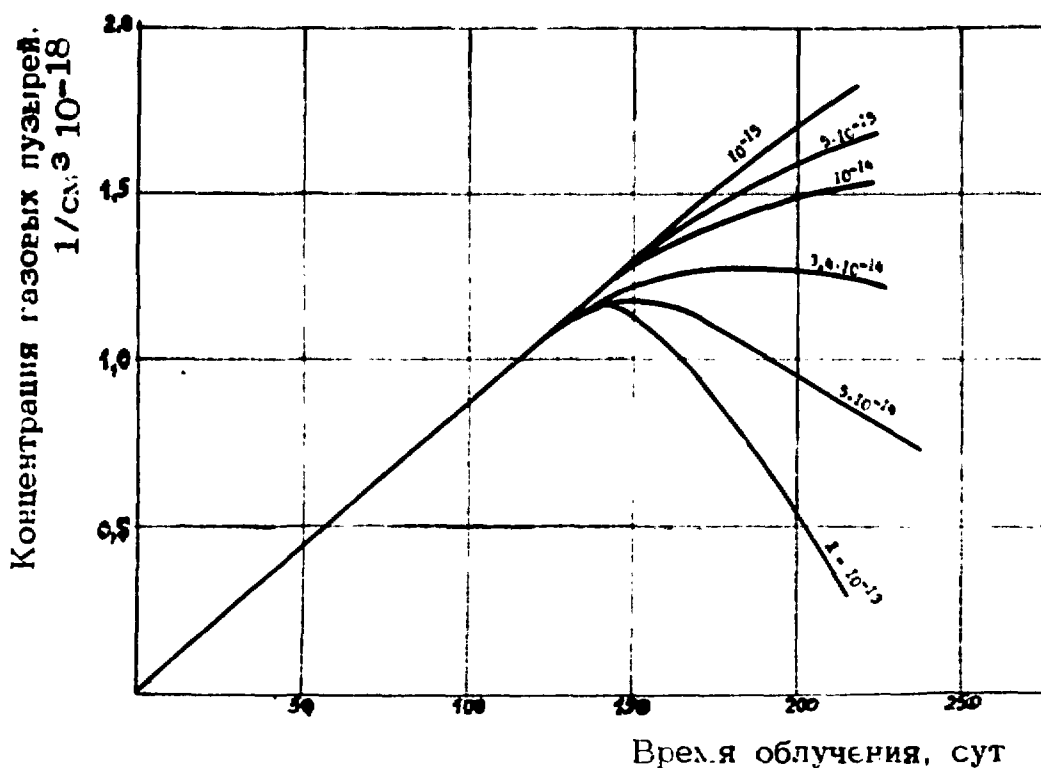


Рис. 11. Зависимость концентрации газовых пузырьков в облучаемой UO_2 от времени облучения. Значение $D_{gr} = 3,4 \cdot 10^{-14}$ - расчет по соотношениям (27), (28) для температур 1700 - 2000 К

Для иллюстрации возможностей полученных соотношений на рис. 13 приведен сравнение экспериментальных данных работы [23] с нашим расчетом по соотношению (37).

Следует отметить, что для твэлов реакторов ВВЭР и РБМК температуры границ зоны равноосных зерен всегда имеют значения $T_{\min} = 1000 - 1300$ и $T_{\max} = 2000$ К. Поэтому средний коэффициент диффузии всегда будет иметь значения $D_{gr} \approx 10^{-14}$ $\text{cm}^2/\text{с}$. Следовательно, кинетике процесса накопления газовых пузырей в таких твэлах будет практически одинаковой: при выгорании 2,5 - 3% накопление газовых пузырей прекращается, а затем их концентрация будет постепенно уменьшаться.

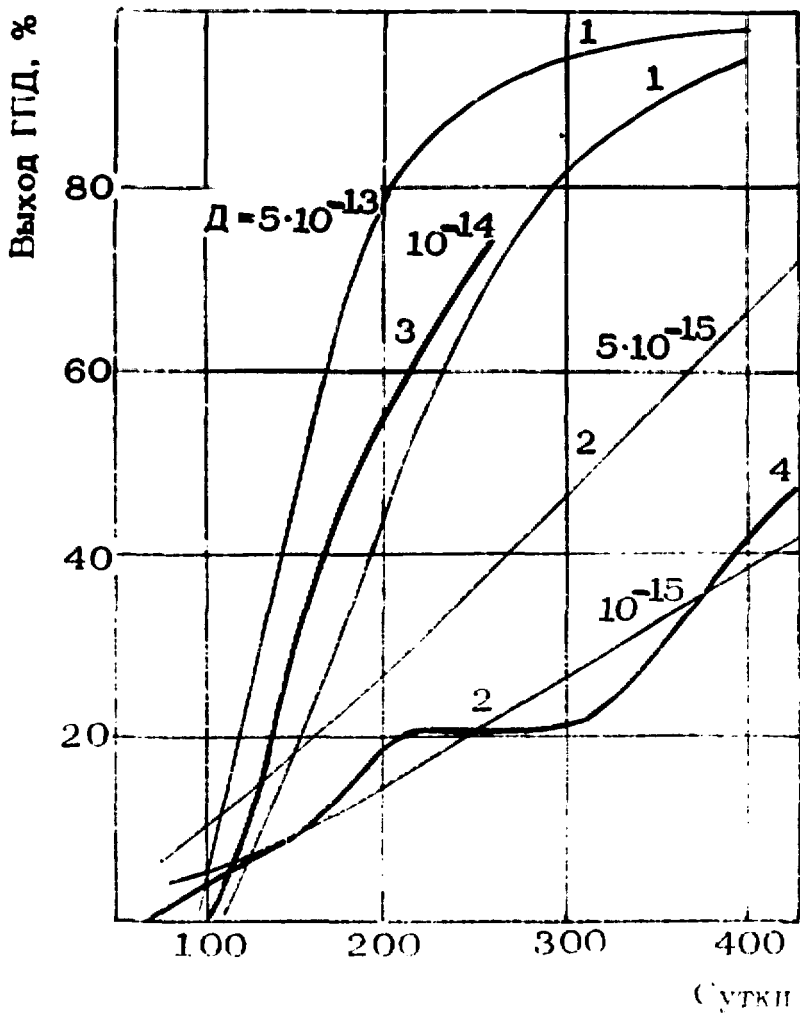


Рис. 12. Зависимость относительного выхода ГГД от времени облучения: 1 - расчет по соотношениям (27), (28) и (37) для температур 1700 - 2000 К; 2 - то же для температур 1300 - 2000 К; 3 - эксперимент для температур 1700 - 2000 К; 4 - эксперимент для температур 1300 - 2000 К

Изложенный механизм газовыделения и накопления газовых пузырей позволяет утверждать, что предложенная усовершенствованная модель эквивалентных сфер правильно от-

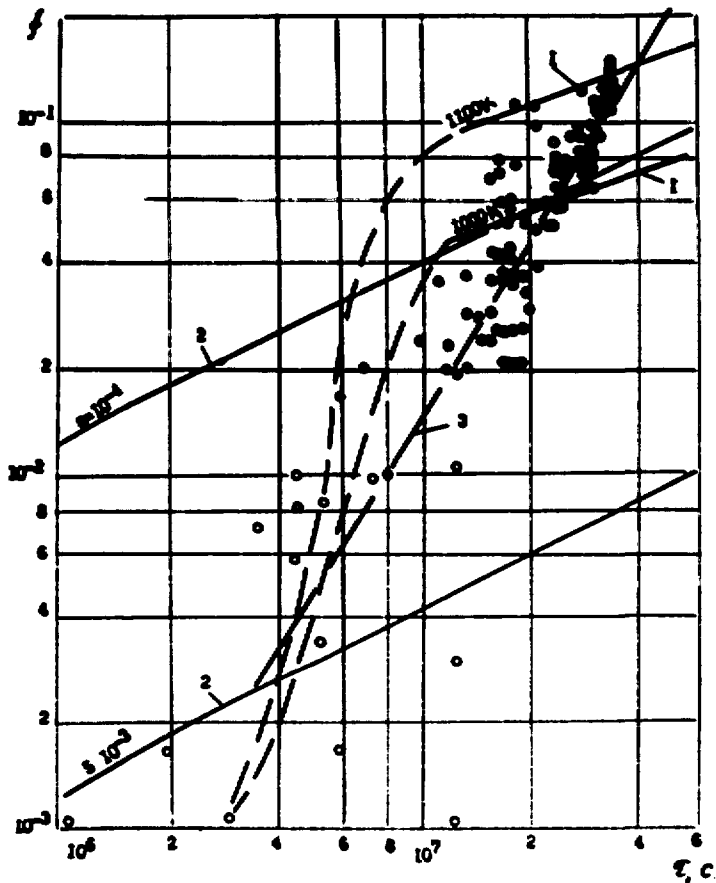


Рис. 13. Зависимость относительного выхода ГПД от времени: точки – экспериментальные данные; 1 – расчет авторов работы [23] по модели, близкой к модели эквивалентных сфер; 2 – расчет по модели эквивалентных сфер; 3 – расчет по соотношению (37) для температур 1300 – 2000 К

ражает экспериментальные факты. Поскольку через короткое время после начала газовыделения скорость выхода ГПД сравнивается со скоростью их образования, очевидно, что

газа, который приводил бы к процессу газового распухания в топливе, не было. Вместе с тем, эксперименты показывают, что пористость в топливе, т.е. распухание, увеличивается. Таким образом, можно утверждать, что вся наблюдаемая пористость открытая, а увеличение пористости происходит из-за образования трещин при измельчении зерен UO_2 . Образующиеся трещины имеют острые грани и углы, что способствует процессу доспекаания, т.е. скругления граней и углов. Поэтому растрескивание будет сопровождаться припеканием зерен друг к другу [24].

Коль скоро модель эквивалентных сфер правильно отражает процесс структурных изменений двуокиси урана в исследованной области выгораний, то связь между открытой пористостью и плотностью топлива (рис. 7) также должна сохраняться.

7. ИЗМЕНЕНИЕ ПОРИСТОСТИ С ВЫГОРАНИЕМ.

Определим пористость (уменьшение плотности) Π как

$$\Pi = 1 - \gamma/10,97, \quad (38)$$

где 10,97 - теоретическая плотность двуокиси урана, г/см³.

Приведенную на рис. 7 зависимость можно аппроксимировать итерполяционной формулой, удобной для расчетов:

$$\gamma' = 2,52 + 0,16\sqrt{\gamma a'} - 0,085(\sqrt{\gamma a'})^2, \quad (39)$$

где $\gamma' = \gamma - 8,5$; $a' = a - 1,26 \cdot 10^{-4}$.

Из соотношения (31) видно, что общая поверхность обратно пропорциональна радиусу зерна:

$$a/a_0 = S_0/S,$$

где a_0 и S_0 - исходные значения радиуса зерна и поверхности топлива.

Результаты по изменению поверхности S/S_0 , приведенные на рис. 3, можно описать соотношением

$$S/S_0 = K_1 + K_2 \beta \quad (40)$$

При начальном радиусе $a_0 = 10^{-2}$ см, т.е. при исходной плотности двуокиси урана, эмпирические константы равны:

$$K_1 = -0,43, \quad K_2 = 1,16 \quad \text{при } T = 1300-2000 \text{ К};$$

$$K_1 = -4 \quad \text{и} \quad K_2 = 4 \quad \text{при } T = 1700-2000 \text{ К.}$$

Из соотношений (31), (35) - (38) получаем

$$\begin{aligned} \Pi(\beta) = 1 - \frac{1}{10,97} \left\{ 11,02 + 0,16 \lg \left(\frac{10^{-2}}{4\beta - 4} - 1,26 \cdot 10^{-4} \right) - \right. \\ \left. - 0,085 \left[\lg \left(\frac{10^{-2}}{4\beta - 4} - 1,26 \cdot 10^{-4} \right) \right]^2 \right\}, \quad (41) \\ \text{при } 1700-2000 \text{ К} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{и} \\ \Pi(\beta) = 1 - \frac{1}{10,97} \left\{ 11,02 + 0,16 \lg \left(\frac{10^{-2}}{1,16\beta - 0,43} - 1,26 \cdot 10^{-4} \right) - \right. \\ \left. - 0,085 \left[\lg \left(\frac{10^{-2}}{1,16\beta - 0,43} - 1,26 \cdot 10^{-4} \right) \right]^2 \right\}, \text{ при } 1300-2000 \text{ К.} \quad (42) \end{aligned}$$

Результаты расчетов по формулам (41) и (42) приведены на рис. 14. Здесь же приведены экспериментальные результаты из работы [5]. Детальное сравнение результатов провести, к сожалению, нельзя, так как для расчетных и экспериментальных кривых не совпадают температурные интервалы. Однако видно, что результаты расчетов правильно отражают влияние температуры на изменение пористости с выгоранием. Более того, величины пористости, рассчитываемые по этим соотношениям, находятся в пределах общего разброса экспериментальных данных. Учитывая также, что растрес-

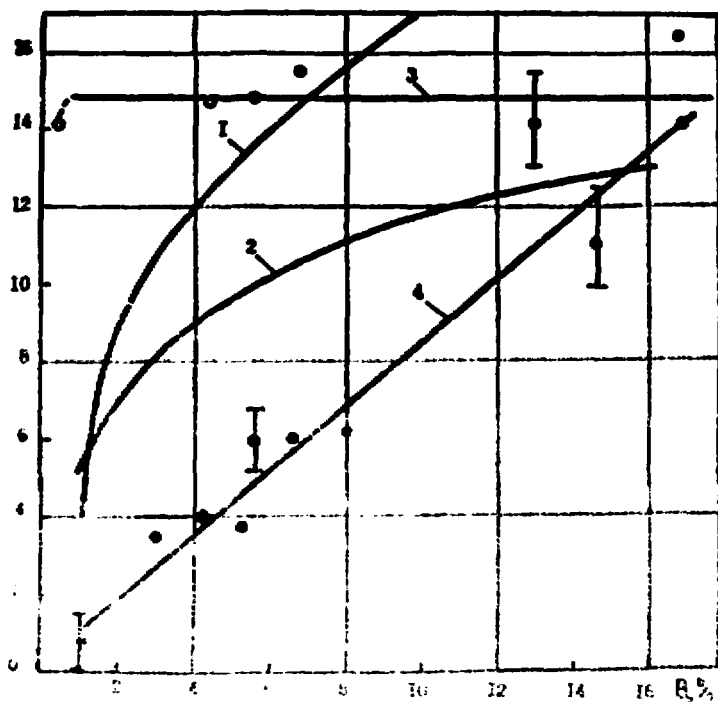


Рис. 14. Увеличение пористости CO_2 от выгорания: 1, 2 — расчеты по соотношениям (41) и (42) соответственно; 3, 4 — прямое наблюдение для температурных зон 1773 — 1973 К и 1273 — 1773 К соответственно

кивание определяется в среднем для всего объема топлива в твое, следует считать результаты расчетов по формулам (41) и (42) вполне достоверными.

Необходимо иметь в виду, что расчет увеличения пористости проведен без учета доспекаания. Дело в том, что начальное растрескивание происходит весьма интенсивно и значения S/S_0 быстро достигают единицы (рис. 8). Кроме того, точное значение радиуса доспеченного зерна установлено с малой достоверностью. Поэтому при реальных выгораниях ($B > 1\%$) целесообразно использовать в расчетах исходную пористость, которая определена достаточно надежно. При более тщательном определении пористости топлива ($B \approx 1\%$) нужно пользоваться данными рис. 8.

Таким образом, увеличение объема двуокиси урана в зоне исходной структуры и равноосных зерен имеет три стадии:

- . до выгорания β_n - "квазитвердое распухание";
- . от выгорания β_n до выгорания β_k - квазитвердое распухание в сумме с начавшимся увеличением пористости;
- . после выгорания β_k - увеличение пористости.

Поскольку на всех стадиях работает диффузионная модель газовыделения, все виды увеличения объема эквивалентны твердому распуханию, т.е. суммарное увеличение объема происходит практически неупруго. И только при достаточно больших выгораниях ($V > 5\%$) должно сказываться влияние накопленной пористости: она может поглощать некоторую часть суммарного увеличения объема топлива. По-видимому, этим объясняется постепенное уменьшение темпа изменения $\Delta V/V$ от выгорания, которое дает предлагаемая феноменологическая теория.

8. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложена непротиворечивая феноменологическая теория структурных изменений и поведения газообразных продуктов деления в облучаемой двуокиси урана при температуре последней до 2000 К. Теория позволяет понять всю совокупность протекающих процессов в топливе до выгораний порядка 10 - 15%. Пользуясь предложенной теорией, можно объяснить практически все полученные к настоящему времени результаты по распуханию и газовыделению в твэлах энергетических реакторов на тепловых нейтронах. По соотношениям, полученным в ходе изложения теории, можно рассчитать увеличение пористости двуокиси урана и выход газообразных продуктов деления под оболочку твэлов.

При решении уравнения (23) введем безразмерные переменные [1]:

$$\varphi = \int_0^t \beta(t) dt \quad \text{и} \quad x = \rho/\rho_0 \quad (1.1)$$

В новых переменных уравнение (23) запишется

$$\frac{\partial f(\varphi, x)}{\partial \varphi} + \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{1}{\Omega(x)} \cdot f(\varphi, x) \right) = \varphi(\varphi) \delta(x-1), \quad (1.2)$$

где $\varphi(\varphi) = \frac{1}{\rho_0} \cdot \frac{\Psi(\varphi)}{\beta(\varphi)}$, $\Omega(x) = \frac{(1 + 25\lambda v/\rho_0 k T x)^2}{(1 + 35\lambda v/\rho_0 k T x)}$.

Граничные условия в переменных φ и x можно записать

$$\begin{aligned} f(\varphi, 1) &= 0 \\ f(0, x) &= 0 \end{aligned} \quad (1.3)$$

Уравнение (1.2) с граничными условиями (1.3) находим с помощью преобразования Лапласа:

$$f(x, \varphi) = \varphi(\varphi) \Omega(x) \theta(x-1) \theta[\varphi - \Gamma(x)], \quad (1.4)$$

где $\Gamma(x) = \int_{1,0}^x \Omega(x) dx$ и $\theta(x) = \begin{cases} 1, & x > 0 \\ 0, & x < 0 \end{cases}$ (1.5)

Для случая, когда $X = 1 + \Delta$ и $\Delta \ll 1$ из (1.5) и (19) следует, что с точностью до членов второго порядка малости

$$\Gamma(1+\Delta) \approx \frac{3}{2} \cdot \frac{\Delta}{\alpha} \cdot \left(1 + \frac{1}{2} \alpha \Delta \right) \quad (1.6)$$

Здесь $\alpha = 2b_{\text{лв}}/kT\rho_0$ ($\alpha \approx 6$).

Если в (1.6) ограничиться первым членом, то

$$\Gamma(x) \approx \frac{3}{2} \cdot \frac{(1-x)}{\alpha} \quad (1.7)$$

Представим $\Phi = \bar{\beta} t$, тогда с учетом уравнений (1.1) и (1.7) получим из (1.4) выражение для функции распределения газовых пузырьков по размерам в переменных ρ, t .

$$f(\rho, t) = \Omega(\rho/\rho_0) \Psi(t) \theta(\rho - \rho_0) \theta[\rho_0(1 + \frac{2}{3} \bar{\beta} \alpha t) - \rho] \quad (1.8)$$

или

$$f(\rho, t) = \begin{cases} \Omega(\rho) \frac{\Psi}{\beta \rho_0} & \text{при } \rho_0 \leq \rho \leq (1 + \frac{2}{3} \bar{\beta} \alpha t) \rho_0 \\ 0 & \text{в остальных случаях} \end{cases} \quad (1.9)$$

Здесь $\bar{\beta} = \frac{3}{4} \frac{A^{кр} kT}{b_{\text{л}} \rho_0} \bar{c}_{кр}$;

$\bar{c}_{кр}$ – усредненная по времени концентрация ГПД в кристалле.

Из (1.9) следует, что функция распределения отлична от нуля для значений ρ , лежащих в интервале от ρ_0 до $\rho_0(1 + \frac{2}{3} \bar{\beta} \alpha t)$. Таким образом, в течение времени, для которого $\frac{2}{3} \bar{\beta} \alpha t \ll 1$, радиус пузырьков меняется незначительно, поэтому, в частности, оправдано допущение $\Delta \ll 1$, приведшее к соотношению (1.6).

ЛИТЕРАТУРА

1. Агранович В.М., Михлин Э.Я., Семенов Л.П. Кинетика набухания делящихся материалов, вызванная выделением газообразной фазы из пересыщенного твердого раствора. "Атомная энергия", т. 15, вып. 5, 1963, с. 393.
2. Chubb W., Storhok V.W., Keller D.L. Factors affecting the swelling of nuclear fuels at high temperatures. "Nuclear Technology", v.18, № 6, 1973, 231-256.
3. Лихачев Ю.И., Пулко В.Я. Прочность тепловыделяющих элементов ядерных реакторов. "Атомиздат", М., 1975.
4. Гегузин Я.Е., Кривоглаз М.А. Движение макроскопических включений в твердых телах. "Металлургия", М., 1971.
5. Цыканов В.А., Лебедев И.Г., Головнин И.С., Клочков Е.П., Кузьмин В.Н., Бибилашвили Ю.К., Матвеев Н.П. Влияние температуры и плотности на размерную стабильность окисного горючего и твэлов на его основе. В сб.: "Вопросы атомной науки и техники. Серия: Радиационное материаловедение, методика и техника облучения". Вып. 4, Димитровград, 1975, с. 18-25.
6. Самсонов Б.В., Сулаберидзе В.Ш. К вопросу о механизме газового набухания UO_2 . В сб.: "Вопросы атомной науки и техники. Серия: Радиационное материаловедение, методика и техника облучения", вып. 1(8). Димитровград, 1977, с. 9-18.
7. Самсонов Б.В., Сулаберидзе В.Ш. Газовыделение из окисного ядерного топлива. Аналитический обзор. Димитровград, 1977.
8. Самсонов Б.В., Фрей А.К. Кинетика выхода осколков деления из керамического ядерного горючего. "Атомная энергия", т. 30, вып. 4, 1971, с. 358.

9. Самсонов Б.В., Спиридонов Ю.Г., Цыканов В.А. формирование структуры и газовыделение из двуокиси урана. Препринт НИИАР, П-177, Димитровград, 1972.
10. Самсонов Б.В., Сидоров В.В., Спиридонов Ю.Г. и др. О газовыделении из двуокиси урана. "Атомная энергия", т. 40, вып. 5, 1976, с. 390.
11. Matsui H., Sakanishi K., Kirihara T. Diffusion of fission-product xenon in uranium monocarbide. "J.Nucl.Sci and Technol." 12, № 7, 1975, 436.
12. Ластман Б. Радиационные явления в двуокиси урана. "Атомиздат", 1964.
13. Самсонов Б.В., Сулаберидзе В.Ш. Всплеск давления в твэлах с компактной UO_2 при первом выходе реактора на мощность. "Атомная энергия", т. 42, вып. 4, 1967. с. 277 - 279.
14. Dollins C.C, Fission gas swelling and long-range migration at low temperatures. "J.Nucl.Mat." v. 49, № 1, 1973/1974, 10-20.
15. Ашиков А.Г., Буревцев А.А., Валуев Е.М. и др. Определение содержания трития и криптона в твэлах ВВЭР и изучение их распределения на операциях подготовки твэлов к регенерации. "Атомная энергия", т. 41, вып. 1, 1976, с. 23 - 26.
16. Голянов В.М., Правдюк Н. и др. Поведение ядерного топлива под облучением (исследования тонких слоев облученной двуокиси урана). Ш Международная конференция ООН по использованию атомной энергии в мирных целях. Доклад A/Conf . 28/P/338 USSR . Женева, май, 1964.
17. Самсонов Б.В., Фрей А.К. Механизм выхода осколков деления из керамического ядерного горючего. "Атомная энергия", т. 31, вып. 2, 1971, с. 136.

18. Слёзов В.В., Рябухин Б.И. О распределении движущихся пор в материале с источниками газа. "Атомная энергия", т. 41, вып. 1, 1976, 31.
19. Конобеевский С.Г. Действие облучения на материалы. "Атомиздат", М., 1967.
20. Chernock W.P., Andrens M.G., Harkness S.I. In-Pile densification on uranium dioxide. Trans ANS, 1975, v. 20, 215.
21. Ghislain de Contenson, Guy Lestibondois, Nicole Vignesult. UO_2 Densification-Irradiation Results, Laws and Models. Trans ANS, 1975, 20, 216.
22. Freshley M.D., Brite D.W., Danueel J.L., Hart P.E. Irradiation induced densification of UO_2 pellet fuel. "J. of Nucl. Mat." 62, 1976, 138-166.
23. Turnbull J.A. The effect of grain size on the swelling and gas release properties of UO_2 during irradiation. "J. of Nucl. Mat." 50, 1974, 62-68.
24. Гегузин Я.Е. Физика спекания. "Наука". М., 1967.

Цена 22 коп.

Индекс 3624

Рукопись поступила в ОПИНТИ
6. 07. 77, обработана 13. 12. 77.
Окончательно подготовлена
авторами 29. 12. 77.

Редактор В. И. Породнова Корректор Л. Н. Кривошеева

Подписано к печати 19.04. 78. Т-04686. Формат 60х901/16
Бумага писчая № 0. ~2, 5 печ. л. ~2, 2 уч.-изд. л.
Тираж 170 экз. Индекс 3624. Заказ 767. Цена 22 коп.

Отпечатано на ротапринте НИИАРа, май, 1978г.
г. Димитровград