



Ю.Г. ДЕГАЛЬЦЕВ  
Н.Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ  
В.Ф. КУЗНЕЦОВ

**ПОВЕДЕНИЕ  
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО  
ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА  
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ**

Ю.Г. ДЕГАЛЬЦЕВ  
Н.Н. ПОНОМАРЕВ-СТЕПНОЙ  
В.Ф. КУЗНЕЦОВ

---

**ПОВЕДЕНИЕ  
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО  
ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА  
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ**



МОСКВА  
ЭНЕРГОАТОМИЗДАТ  
1987

## СОДЕРЖАНИЕ

Предисловие . . . . .	3
<i>Глава 1. Основные факторы, определяющие работоспособность высокотемпературного ядерного топлива . . . . .</i>	<i>5</i>
1.1. Введение . . . . .	5
1.2. Радиационное воздействие на топливо при облучении . . . . .	10
1.3. Температурное воздействие на топливо при облучении . . . . .	18
1.4. Механическое воздействие на топливо при облучении. Взаимодействие топлива с оболочкой . . . . .	35
<i>Глава 2. Миграция газов и распухание делящихся композиций. . . . .</i>	<i>41</i>
2.1. Введение . . . . .	41
2.2. Газовое распухание топлива . . . . .	42
2.3. Миграция газообразных продуктов деления. . . . .	68
<i>Глава 3. Поведение топлива в твэлах реакторов различных типов . . . . .</i>	<i>87</i>
3.1. Введение . . . . .	87
3.2. Твэлы энергетических реакторов с водяным и жидкометаллическим теплоносителем . . . . .	89
3.3. Высокотемпературные оболочечные твэлы . . . . .	105
3.4. Тепловыделяющие элементы с микротопливом для ВТГР . . . . .	121
<i>Глава 4. Моделирование поведения высокотемпературного ядерного топлива при облучении . . . . .</i>	<i>137</i>
4.1. Введение . . . . .	137
4.2. Модели газового распухания . . . . .	139
4.3. Примеры расчетного моделирования . . . . .	164
Список литературы . . . . .	199

Дегальцев Ю. Г., Пономарев-Степной Н. Н., Кузнецов В. Ф. Поведение высокотемпературного ядерного топлива при облучении. М.: Энергоатомиздат, 1987. 208 с.

Рассмотрены процессы, протекающие в ядерном топливе при работе в условиях высокотемпературного твэла и определяющие его работоспособность, такие, как поведение продуктов деления, перестройка структуры, массоперенос, механическое и физико-химическое взаимодействие с оболочкой. Дано систематизированное описание процессов, приводящих к высокотемпературному газовому распуханию топлива, включая процессы миграции ксенона и криптона, образование внутри- и межзеренных пузырьков, межзеренных каналов, влияние параметров облучения и структуры топлива на распухание. Изложены вопросы расчетного моделирования газового распухания ядерного топлива твэлов энергетических реакторов в области высокой температуры при неравномерных нейтронных и тепловых полях.

Для научных работников и инженеров, занимающихся исследованием и проектированием ядерных реакторов.

Библиогр. 174 назв. Ил. 134. Табл. 16.

Рецензент П. А. Платонов

## ПРЕДИСЛОВИЕ

Вряд ли в технике можно найти какой-либо элемент конструкции, подверженный столь сложному комплексу воздействий, как тепловыделяющий элемент (ТВЭЛ) ядерного реактора и его основная составляющая — ядерное топливо. Ядерные превращения при делении ядер и их последующем радиоактивном распаде, когда в топливе выгорает делящееся вещество, приводят к возникновению новых элементов, существенно изменяющих физические и химические свойства исходного топлива. Радиационное воздействие осколков деления, нейтронов,  $\gamma$ -излучения и продуктов радиоактивного распада вызывает нарушение структуры и химических связей и приводит к импульсным локальным температурным возбуждениям. Торможение излучений приводит к нагреву топлива до высоких температур и возникновению температурных полей со значительными градиентами. В этих условиях интенсивно протекают различные процессы: перестройка кристаллической структуры, перенос массы за счет процессов испарения—конденсации и диффузии атомов, образование дефектов структуры, образование и рост газовых пузырей, химические превращения, обусловленные нарушением химических связей и изменением элементного состава топлива. И, наконец, в топливе возникает напряженно-деформированное состояние, как за счет термических напряжений, так и из-за его взаимодействия с оболочкой ТВЭЛА при деформации, связанной со структурными изменениями и распуханием.

При всех этих воздействиях ТВЭЛ в течение длительного времени должен выполнять функции источника тепла при условии надежного удержания радиоактивных продуктов деления от попадания в окружающую среду. На практике это означает необходимость сохранения механической целостности ТВЭЛА, его герметичности и геометрических размеров в допустимых пределах.

К настоящему времени в мире функционирует большое число ядерных реакторов различных типов и для них разработаны и успешно эксплуатируются разнообразные виды ядерного топлива и ТВЭЛОВ. Накоплен большой объем информации по поведению ядерного топлива и выявлению основных закономерностей процессов при облучении. Эти данные получены как при лабораторных внереакторных и реакторных исследованиях топлива, так и при изучении топлива ТВЭЛОВ, прошедших облучение в составе эксплуатирующихся реакторов. Тем не

менее было бы ошибочно утверждать, что наше понимание процессов в ядерном топливе является полным, что мы знаем все закономерности его поведения, необходимые для конструирования твэлов на любые условия работы. Особенно это относится к поведению топлива при высоких температурах, когда интенсифицируются процессы структурных превращений, диффузионные процессы и химические взаимодействия. Эти проблемы возникают и при разработке низкотемпературных твэлов энергетических реакторов с водяным или натриевым теплоносителем, так как в их топливном сердечнике из диоксида урана в центральной зоне температура может достигать температуры плавления топлива. Еще более существенным является понимание работы топлива при высоких температурах для высокотемпературных ядерных реакторов, разработка которых связана со стремлением к повышению эффективности и надежности ядерной энергетики и расширением областей ее внедрения.

Данная книга посвящена систематизации и обобщению экспериментальных и теоретических данных о поведении ядерного топлива при высоких температурах и облучении. В первых разделах книги анализируются каждое из основных воздействий и стимулируемые ими процессы при облучении топлива.

Комплексный характер воздействий рассматривается при анализе поведения топлива в твэлах. Вследствие разнообразных условий работы топлива в реакторах различного назначения по энергонапряженности, температуре, конструкционному оформлению твэлов анализ особенностей поведения топлива проведен для каждого типа твэлов, при этом выявлено влияние каждого из воздействий на поведение топлива.

На основе анализа экспериментальных и теоретических работ рассматриваются опубликованные в литературе и оригинальные подходы к моделированию радиационного поведения топлива в твэлах различных типов. Основное внимание сосредоточено на вопросах моделирования газового распухания топлива. Излагаются инженерные модели поведения топлива в твэлах реакторов различных типов, позволяющие рассчитывать изменение параметров твэлов в процессе эксплуатации.

Авторы признательны докт. техн. наук П. А. Платонову, который тщательно прорецензировал рукопись и сделал полезные замечания, большинство из которых было учтено.

Замечания о книге авторами будут приняты с благодарностью.

*Авторы*

## ГЛАВА 1

# ОСНОВНЫЕ ФАКТОРЫ, ОПРЕДЕЛЯЮЩИЕ РАБОТОСПОСОБНОСТЬ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

### 1.1. Введение

Опыт развития реакторостроения показывает, что коренная проблема создания реакторной установки заключается в разработке твэла, причем такие его характеристики, как энергонапряженность и глубина выгорания топлива, являются ключевыми в получении высоких термодинамических, массовых, ресурсных, экономических и других показателей эффективности той или иной установки. В высокотемпературных системах к этим характеристикам добавляется еще максимально допустимый уровень температуры.

В твэле происходит превращение энергии деления в тепло. Материал топлива испытывает при этом комплексное радиационное, температурное и механическое воздействие, в результате которого выгорает делящийся материал, накапливаются продукты деления, повышается давление, происходят структурные изменения, материал испаряется, идут процессы взаимодействия материалов, уменьшается плотность, возникают термические напряжения и т. д. В этих условиях твэл и его компоненты должны сохранить работоспособность, в понятие которой включается прежде всего стабильность геометрии и прочностных характеристик, удержание продуктов деления.

Создание твэлов высокотемпературных реакторов связано с необходимостью разработки и изучения топливных композиций, обеспечивающих работоспособность твэла при соответствующем температурном уровне. Основным топливным материалом, используемым как в низкотемпературных, так и высокотемпературных реакторах, является диоксид урана. Однако разнообразие высокотемпературных реакторов и специфика их целевого назначения ставит задачи расширения перечня топливных композиций; в качестве таких композиций кроме  $UO_2$  могут рассматриваться соединения с металлоидами (C, N, P, S). Их свойства изучены существенно меньше, чем свойства диоксида урана, и данные о поведении под облучением получены лишь при исследовании экспериментальных образцов в реакторах или при испытании опытных реакторных установок.

В табл. 1.1 представлены основные свойства тугоплавких соединений урана, определяющие их применение в качестве высокотемпературного топлива. Представленные топливные соединения находятся на различных стадиях изученности свойств и поведения в реакторе, при-

Таблица 1.1. Основные свойства тугоплавких топливных материалов [1]

Соединение	Теоретическая плотность, г/см <sup>3</sup>	Массовая концентрация урана, г/см <sup>3</sup>	Температура плавления, °С	Температурный коэффициент линейного расширения, К <sup>-1</sup>	Теплопроводность при T = 1000 °С, Вт/(м · К)
UO <sub>2</sub>	10,97	9,67	2800	10,6	3,6
UC	13,63	12,97	2525	12,6	20
UC <sub>2</sub>	11,67	10,70	2450	15,8	17
UN	14,32	13,52	2850*	9,3	15
UP	10,23	9,05	2610	9,2	17,2
US	10,87	9,58	2480	(10)	15

\* Плавится с разложением при давлении азота, равном 0,25 МПа.

менения в серийных и экспериментальных установках и, конечно, отработанности технологии.

Наиболее изучено во всех отношениях оксидное топливо, основным представителем которого является диоксид урана. Это топливо используется в основном в действующих атомных электростанциях (АЭС), в опытных разработках термозмиссионных преобразователей ("Топаз", ГТР), в микротвэдах высокотемпературных гелиевых реакторов (ВТГР). Создано промышленное производство таблеток UO<sub>2</sub>, обладающих необходимыми свойствами, накоплен огромный практический материал по работоспособности твэлов в различных условиях.

Карбидное и нитридное топлива прошли уже достаточно большой цикл исследования свойств, в том числе и при облучении в реакторах. Их применение в основном планируется в реакторах-размножителях на быстрых нейтронах. Карбидное топливо на основе UC<sub>2</sub> опробовалось в термоэлектрическом преобразователе "Ромашка". Кроме того, наряду с UO<sub>2</sub>, карбидное (а в последнее время и нитридное) топливо используется в микротвэдах ВТГР. По "проработанности" карбидное топливо опережает нитридное. Что касается производства карбидного и нитридного топлив, то оно еще не вышло из лабораторного и опытно-промышленного состояния и здесь еще существуют некоторые технологические трудности.

Соединения урана с фосфором и серой обладают свойствами, близкими к свойствам карбидов, исследование этих соединений как топлива находится на начальной стадии.

Наряду с чистыми соединениями изучаются и используются композитные материалы, например керметы, диоксид урана с металлами (Mo, W, Ni и т. д.), смешанные фазы внедрения — карбонитриды урана, карбиды урана с добавками карбида циркония, а также смеси оксида и фаз внедрения — оксикарбонитриды. Таким способом удастся в некоторой степени улучшить некоторые свойства чистых веществ.



Диоксид урана можно рассматривать как соединение с ионной связью термически стабильное, инертное до высоких температур по отношению к различным материалам: сталям, тугоплавким металлам, оксидам и т. д. Инертность  $UO_2$  по отношению к воде при высоких температурах послужила стимулом широкого использования диоксида урана в ядерной энергетике. Диоксид урана легко спекается до высокой плотности, превышающей 95% теоретической и сердечники из него обладают достаточно высокой чистотой (массовое содержание примесей менее  $10^{-2}$  —  $10^{-3}\%$ ). Указанные свойства, несмотря на низкую теплопроводность и сравнительно малое содержание урана в единице объема, обеспечили широкое использование диоксида урана. Спеченный  $UO_2$  при комнатной температуре обладает типичными чертами оксидной керамики: высокой твердостью, хрупкостью, прочностью, большим электрическим сопротивлением. Диоксид урана при высоких температурах (более  $1000^\circ C$ ) хорошо растворяет кислород: фаза  $UO_2$  имеет область нестехиометричности в интервале значений от  $UO_{1,98}$  до  $UO_{2,25}$ ; при увеличении содержания кислорода резко уменьшается энергия связи атомов в решетке, что приводит к существенному изменению физических свойств диоксида урана.

Карбиды и нитрид урана являются фазами внедрения, в которых атом металлоида (C, N) располагается в металлической подрешетке урана в позициях внедрения. Межатомные связи в карбидах и нитридах в большой степени являются металлическими, что приводит к появлению электронной проводимости, высокой теплопроводности, наличию металлического блеска; при этом материалы сохраняют высокую прочность, хрупкость и твердость при комнатных температурах, характерную для керамики.

Монокарбид и нитрид урана в отличие от большинства фаз внедрения имеют сравнительно небольшие области нестехиометрии при высокой температуре: монокарбид в интервале  $UC_{0,96}$  —  $UC_{1,06}$ , мононитрид в интервале  $UN_{0,99}$  —  $UN_{1,00}$ . Однако изменение состава даже в таких малых интервалах приводит к значительным изменениям физических свойств. В процессе изготовления карбидов и нитридов весьма трудно получить чистые материалы, обычно в них присутствуют или металлический уран, или фазы, богатые металлоидом ( $UC_2$ ,  $U_2N_3$ ). Карбиды и нитриды обладают высокой растворимостью кислорода: атомарное содержание кислорода в UC может достигать 15–17%, в UN — 3% [1]; в нитриде урана часто присутствуют включения  $UO_2$ . Дикарбид урана также трудно получить однофазным, в нем присутствуют включения UC и графита, а также примеси кислорода и азота.

С точки зрения характеристик реактора (масса, габаритные размеры, энергонапряженность, расход топлива) предпочтительными являются топливные соединения с максимальным удельным содержанием урана и наибольшей теплопроводностью. Таким топливом являются карбид и нитрид, однако химическая инертность, надежность

Таблица 1.2. Характерные режимы эксплуатации твэлов различных типов

Тип твэла	Температура, °С		Градиент температуры, К/см	Глубина выгорания, дел/см <sup>3</sup>	Скорость выгорания, дел/(см <sup>3</sup> ·с)
	Центр твэла	Поверхность твэла			
1. Оболочечный, для реактора на тепловых нейтронах типа ВВР	До $T_{пл}^*$	300	До $3 \cdot 10^3$	Менее $1,5 \cdot 10^{21}$	$1 \cdot 10^{13}$
2. Оболочечный, для реактора на быстрых нейтронах	То же	700	До $7 \cdot 10^3$	Менее $3 \cdot 10^{21}$	$1 \cdot 10^{14}$
3. Оболочечный для встроенного в реактор термоэмиссионного преобразователя	1500–2000	1400–1800	До 500	Менее $3 \cdot 10^{20}$	$3 \cdot 10^{12}$
4. Микротвэл с защитным покрытием для ВТТР	До 1500	До 1500	—	$(3-6) \cdot 10^{21}$	$5 \cdot 10^{13}$

\*  $T_{пл}$  — температура плавления.

и отработанность технологии диоксида урана, лучшая изученность процессов, протекающих под облучением, делают его на сегодняшний день основным высокотемпературным топливом.

Характерные температурные и энергетические режимы работы топлива в твэлах различных типов представлены в табл. 1.2. В основу классификации твэлов по режимам положена в основном температура на поверхности твэла, которая во многом определяет выбор материалов и характер процессов, контролирующую работоспособность твэла.

При количественном описании радиационного воздействия используются величины, характеризующие интенсивность и дозу воздействия. Наиболее употребимой в материаловедении ядерного топлива характеристикой радиационного воздействия является количество делений в единице объема в единицу времени  $F_d$ , дел/(см<sup>3</sup>·с). Эта величина непосредственно связана с количеством и объемным распределением образующихся дефектов структуры и осколков деления,

приводящих к изменению физических свойств топлива. На практике считают, что на один акт деления в реакторе выделяется около 200 МэВ энергии. Эта же величина обычно принимается и для оценки энерговыделения в топливе, при этом пренебрегают малой долей энергии, выделяемой при замедлении нейтронов и  $\gamma$ -квантов в других (не топливных) материалах реактора.

Естественно, что интегральный показатель радиационного воздействия на материал топлива — или глубина выгорания — наиболее точно характеризуется полным количеством делений в единице объема топли-

ва за все время облучения  $\int_0^T F_d(t') dt'$ , дел/см<sup>3</sup>. Однако на практике используется и ряд других показателей выгорания, которые могут быть однозначно или приблизительно связаны с полным количеством делений в единице объема топлива. Эти показатели следующие:

массовое количество осколков деления, находящихся в единице объема топлива (г/см<sup>3</sup>);

глубина выгорания топлива в виде отношения энергии, выделяющейся за время работы реактора, к массе загруженного топлива, МВт X X сут/(т U); при этом под массой топлива, как правило, понимают массу тяжелых атомов, включая все нуклиды делящихся и сырьевых материалов, таких, как уран, плутоний, торий;

относительное выгорание тяжелых атомов (нуклидов) топлива, выраженное в процентах. При этом выгоревшими считаются ядра тяжелых атомов, претерпевших деление. Иногда в качестве физической характеристики выгорания используется выгорание тяжелых атомов топлива, отнесенное к исходным атомам делящегося вещества, выраженное в процентах.

**Таблица 1.3.** Соотношения между различными единицами измерения глубины выгорания топлива для некоторых соединений урана при теоретической плотности

Соединение	Глубина выгорания		
	дел/см <sup>3</sup> , 10 <sup>20</sup>	%	МВт · сут/т U
UO <sub>2</sub>	1	0,401	3860
	2,49	1	9600
UC	1	0,299	2880
	3,34	1	9600
UC <sub>2</sub>	1	0,363	3490
	2,75	1	9600
UN	1	0,287	2760
	3,48	1	9600

В данной книге при рассмотрении материаловедческих аспектов поведения топлива под облучением используются в основном скорость делений и полное количество делений в единице объема топлива. При рассмотрении поведения топлива под облучением в составе твэлов глубина выгорания, как правило, выражается в единицах энергосыработки на массу топлива, или в процентном выгорании тяжелых атомов (табл. 1.3). В дальнейшем, всюду где это специально не оговорено, для краткости понятие "глубина выгорания" выражается одним словом "выгорание".

## **1.2. Радиационное воздействие на топливо при облучении**

**Воздействие осколков деления.** Радиационное воздействие на топливо при работе ядерного реактора обусловлено взаимодействием с материалом топлива осколков деления, нейтронов, электронов и  $\gamma$ -квантов. Эти частицы при торможении в веществе передают ему свою энергию, которая идет на нагрев вещества, ионизацию и образование дефектов структуры. Переданная энергия и концентрация выделения энергии существенно зависят от типа частиц.

Более 90% энергии, выделяющейся в топливе, приходится на осколки деления, поэтому их воздействие на топливо является определяющим. Образующиеся в акте деления тяжелый и легкий осколки обладают энергией около 70 и 100 МэВ соответственно и значительным электрическим зарядом. На большей части пути осколок деления теряет свою энергию в основном вследствие ионизации атомов решетки. Атомные столкновения на этом отрезке носят эпизодический характер.

По мере прохождения через вещество энергия и заряд осколка деления непрерывно уменьшаются, в конце пути, начиная с энергии около 1 МэВ, потеря энергии происходит путем упругих и неупругих столкновений с атомами решетки, при этом возникает так называемый пик смещения, когда в объеме с малым размером (сфера радиусом около 100 Å) на каждый атом выделяется энергия, превышающая энергию смещения. Отдельно расположенные пики смещения меньшего размера образуются также по всей длине трека от эпизодических столкновений осколка с атомами решетки.

Средний пробег осколка деления зависит от свойств тормозящего вещества и для диоксида урана он составляет 6 и 9 мкм для тяжелого и легкого осколков соответственно.

Процессы, протекающие в зоне прохождения осколка деления еще недостаточно изучены. Экспериментально обнаружены следующие основные факты, связанные с прямым наблюдением этой зоны.

1) В некоторых материалах с помощью электронного микроскопа в тонких фольгах удается непосредственно наблюдать следы (треки),

оставшиеся от прохождения осколков деления, в виде темной линии, представляющей собой дифракционный эффект, вызванный деформацией материала. Ширина темных линий составляет 100–150 Å и является верхним пределом реального размера зоны нарушения.

Треки могут быть декорированы осаждением в них атомов примеси, которые мигрируют в поле деформаций к оси трека; так, например, декорируют треки атомами серебра в виде серебряных нитей в стеклах и солях, при этом диаметр выделившихся нитей составляет около 50 Å. Декорирование треков аналогично известному декорированию дислокаций. Треки наблюдаются в диэлектриках и некоторых полупроводниках; в проводниках, как правило, треки не наблюдаются. Экспериментально определенное пороговое электросопротивление, при котором наблюдается появление треков, составляет около  $2 \cdot 10^3$  Ом · см. Наблюдаются также треки в сверхмелкозернистых металлах (размер зерен десятки ангстрем), получаемых обычно в виде фольги путем напыления.

2) При воздействии химическими реактивами на шлиф материала, содержащий треки, наблюдается повышенная скорость травления зоны трека, что приводит к четкому выявлению треков, выходящих на поверхность шлифа в виде конусовидных ямок травления. Скорость травления уменьшается при удалении от оси трека (рис. 1.1), пока не достигнет значения, характерного для исходного материала. Отношение скоростей травления зоны трека и исходного материала достигает  $10^3 - 10^4$ , диаметр зоны высокого травления составляет примерно 100 Å и достаточно устойчиво воспроизводится по длине трека. По результатам травления можно оценить энергию, накопленную на единицу длины трека; для материала с атомной массой 100 удельная энергия составляет около 700 МэВ/см. Если полная потеря энергии осколком составляет около  $(0,5 \div 1) \cdot 10^5$  МэВ/см, то доля энергии, переданная веществу и приводящая к уменьшению энергии активации химического травления, составляет примерно 1% всей выделенной энергии.

3) При нагреве материала, содержащего треки деления, происходит частичный или полный отжиг трека, после которого он не выявляется химическим травлением. Время полного отжига трека экспоненциально зависит от температуры (рис. 1.2):  $\tau = A \exp(Q/RT)$ , энергия активации полного отжига треков  $Q$  обычно составляет не менее 200 кДж/моль и близка к известным или ожидаемым значениям энергии активации диффузии атомов или ионов материала. Кажущаяся энергия активации меняется в процессе отжига. Температура полного отжига трека за 1 ч равна, например, для кварца (муллита) 1050 °С, а начальная стадия отжига за то же время наблюдается при температуре 1000 °С. Эта температура составляет около 0,6, температуры плавления соединения, однако четкой зависимости температуры полного отжига от температуры плавления, или рекристаллизации материала, пока не обнаружено.

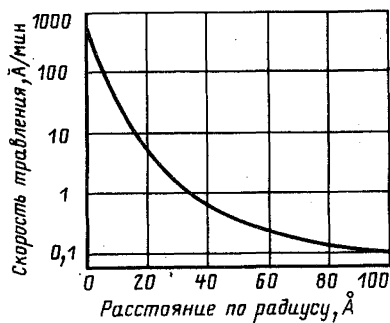


Рис. 1.1. Зависимость скорости травления HF зоны трека в сплюде от расстояния по радиусу до оси трека [2]

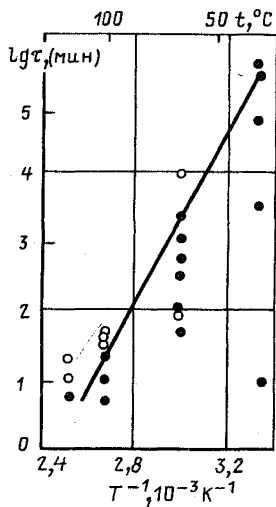


Рис. 1.2. Зависимость времени отжига треков в стекле состава  $P_2O_5 \cdot 5V_2O_5$  от температуры [2]:

○ — треки отожглись; ● — треки сохранились (линией на рисунке обозначена граница раздела между областями отожженных и неотожженных треков)

Механизм передачи энергии осколком деления кристаллу, характер и число образовавшихся при этом дефектов в настоящее время недостаточно ясны. Наиболее распространены следующие две физические модели.

*Модель теплового электронного пика.* Потеря энергии осколком вследствие ионизации приводит к выбиванию электронов с энергией, достаточной для вторичной ионизации, так что вокруг траектории осколка образуются каскады электронов. Сами электроны не приводят к существенному образованию дефектов. Энергия выбитых электронов расходуется на разогрев решетки, при этом объем участка решетки, в котором повышается температура, и абсолютное значение температуры зависят прежде всего от среднего пробега электронов. Чем меньше пробег, тем меньше разогреваемый объем, выше концентрация выделяемой энергии и температура. В случае высокой концентрации выделяемой энергии температура может превышать температуру фазовых переходов, при этом образуются наблюдаемые в электронном микроскопе следы — треки.

Пробег электронов зависит от электронной структуры вещества и дефектности решетки. В ионных кристаллах (например,  $UO_2$ ) и в металлах с сильно искаженной структурой (например, уране, осажденном в виде тонкой пленки и обладающем сверхмелкозернистой структурой) пробег электронов мал, и в материале образуются треки деления. В большинстве компактных металлов треки не наблюдаются.

*Модель ионного взрыва [2].* В материалах, образующих трески, в результате первичной ионизации атомов вдоль траектории осколка деления создается узкий цилиндр с повышенной плотностью положительного заряда. Между ионами возникают силы отталкивания, которые приводят к переходу части атомов в междоузлия и образованию вакансий. Трески не образуются в том случае, если электроны из окружающего пространства смогут занять место выбитых электронов до того как произойдет ионный взрыв. Это происходит в материалах, в которых плотность электронов проводимости  $n_n$  и их подвижность  $\mu_n$  высоки; условие образования тресков может быть записано в виде

$$n_n < n_a / (\pi a_0 D \tau),$$

где  $n_a$  — число ионов на атомной плоскости, пересекаемой осколком;  $a_0$  — межатомное расстояние;  $D$  — параметр диффузии электронов:  $D = \mu_n kT / e$ , здесь  $e$  — заряд электрона. Это уравнение в обычных условиях применимо к полупроводникам и диэлектрикам при времени диффузии  $\tau \approx 10^{-13}$  с, кроме того оценка по нему показывает, что трески не будут образовываться в металлах, если только  $n_n \geq 10^{20} \text{ см}^{-3}$ .

Вторым фактором, определяющим образование тресков, является подвижность вакансий, которые могут мигрировать из центральной зоны трека в окружающую область и тем самым предотвращать образование трека. Трек не возникает, если подвижность вакансий больше  $z_0^2 e / 4\pi kT$ , где  $z_0$  — заряд ядра. Например, большинство полупроводников, в которых трески не были обнаружены, имеют подвижность вакансий выше  $150 \text{ см}^2 / (\text{В} \cdot \text{с})$ .

Вообще, на основании экспериментальных наблюдений, независимо от механизма передачи энергии трек представляет собой стабильную зону деформации, образованную в основном смещенными атомами. По-видимому, большинство атомов в зоне трека обладают повышенной свободной энергией, что влияет на скорость диффузионных процессов. Предполагается, что трек имеет двухзонное строение, во внутренней зоне вдоль оси трека плотность понижается из-за избыточной концентрации вакансий и в ней возникают растягивающие напряжения; во внешней коаксиальной зоне повышается концентрация внедренных атомов и возникают сжимающие напряжения.

Естественно предположить, что прохождение осколка деления должно влиять на структуру окружающего материала. По-видимому, должно происходить частичное или полное "стирание" дефектов, возникших ранее; полному исчезновению могут быть подвержены дефекты, имеющие размеры меньше диаметра возбужденной зоны, например пузырьки или поры. Это достаточно очевидно для материалов, образующих видимые трески, и, возможно, имеет место в материалах, трески в которых не образуются.

Затормозившиеся осколки деления пересыщены нейтронами и подвержены  $\beta$ -распаду. В среднем каждый осколок деления последова-

тельно испытывает 2–3  $\beta$ -распада до перехода в стабильное состояние. Энергия  $\beta$ -распада распределяется между  $\beta$ -частицей,  $\gamma$ -квантом, нейтрино и ядром отдачи. В процессе облучения топлива воздействие этих частиц мало в сравнении с воздействием осколков деления. При изучении облученного топлива вне реактора воздействие  $\beta$ -распада может сказаться на течении процессов.

**Поведение продуктов деления.** В результате деления и последующего радиоактивного распада образуется большое число химических элементов с разным значением выхода на один акт деления. Значение выхода осколков на один акт деления изменяется в зависимости от спектра нейтронов, вызывающих деление, и соотношение концентрации продуктов распада зависит от времени облучения. Общее содержание примесей, образовавшихся при делении, определяется степенью выгорания топлива и колеблется от долей процента в твэлах специальных реакторов до десятков процентов при использовании микротвэлов. Образующиеся примеси ведут себя в топливной матрице в соответствии с физико-химическими свойствами и режимом работы топлива. Кроме продуктов деления, образующихся в процессе ядерных превращений, на каждый акт деления в диоксиде урана освобождается два атома кислорода, в карбидном и нитридном топливе — соответственно углерод и азот.

Основные продукты деления можно разбить на несколько групп в соответствии с их физико-химическими свойствами. В табл. 1.4 представлено двадцать основных элементов, которые разбиты на семь групп и составляют более 99,5% всех образующихся продуктов деления при облучении тепловыми нейтронами.

Примерно четвертая часть продуктов деления (тугоплавкие и благородные металлы) образуют сфероидальные металлические включения в топливе, достигающие при длительном облучении значительных размеров (1–2 мкм). Большая часть — 50% (цирконий, редко- и щелочноземельные металлы) — образуют оксиды, которые полностью или частично растворяются в  $UO_2$ . Щелочные металлы (Cs, Rb) и металлоиды (Te, I) при высокой температуре имеют большую подвижность в  $UO_2$ , их состояние при этом в решетках тугоплавких соединений урана мало изучено, в связи с чем недостаточно ясно их влияние на поведение топлива под облучением.

Благородные газы Xe и Kr составляют примерно 12% продуктов деления и образуют в топливе газовую фазу в виде пузырей.

Кислород, освобождающийся при акте деления в  $UO_2$ , практически весь расходуется на образование оксидов продуктов деления, хотя, по-видимому, возможно некоторое увеличение кислородного коэффициента (O/U) и в самом диоксиде урана.

Образовавшиеся продукты деления в меру своей подвижности мигрируют в поле температуры, массоперенос может также осуществляться перемещением границ зерен и пор матрицы. Часть продуктов деления



**Таблица 1.4.** Основные элементы, входящие в состав продуктов деления (длительное облучение тепловыми нейтронами диоксида урана до выгорания 10%; интенсивность выгорания 100 Вт/г) [1]

Характеристика		Число атомов на один разделившийся атом U	Поведение в топливе
Группа	Элемент		
Благородные газы	Xe	0,22	Газовые пузыри
	Kr	0,03	
Тугоплавкие металлы	Zr	0,33	ZrO <sub>2</sub> – в твердом растворе Металлические включения
	Mo	0,25	
Благородные металлы	Ru, Rh, Pd, Tc	0,22	Металлические включения
	Редкоземельные металлы	Nd	
		Ce	0,12
	La, V, Pr, Sm		
Щелочные металлы	Cs, Rb	0,21	Пар (при $t > 1000$ °C)
Металлоиды	Te, I	0,04	
Щелочноземельные металлы	Ba, Sr	0,16	Оксиды, могут образовывать уранаты

выходит из топлива наружу. Накопление в топливе продуктов деления в различных фазовых состояниях приводит к изменению практически всех его исходных свойств. Продукты, выделившиеся из топлива, меняют теплопроводность зазора топливо–оболочка, увеличивают давление на оболочку и могут взаимодействовать с материалом последней.

**Изменение физических свойств.** Процессы, вызванные облучением, приводят к изменению некоторых физических свойств топлива, которые в той или иной степени сказываются на работоспособности твэлов.

В результате замедления быстрых нейтронов и прохождения осколков деления образуются точечные дефекты в виде вакансий и внедренных атомов в металлической и металлоидной подрешетках. Число точечных дефектов не может возрастать беспредельно: мигрируя в решетке, они аннигилируют или образуют более сложные дефекты, в связи с этим число точечных дефектов приближается к пределу при достижении некоторых значений флюенса и выгорания. Уровень этой дозы зависит прежде всего от температуры: чем она выше, тем быстрее происходит аннигиляция и коагуляция дефектов, что приводит к снижению предела насыщения. Собственно точечные дефекты могут вызывать изменение некоторых физических свойств, например уменьшение теплопроводности. Так, для UO<sub>2</sub> уменьшение теплопроводности при температурах до 500 °C составляет 20–50% и достигает насыщения

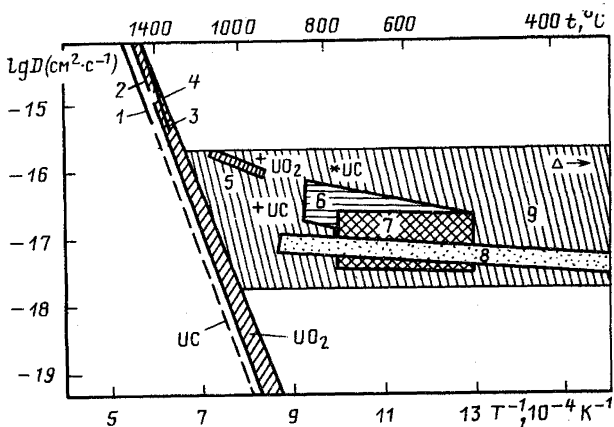



Рис. 1.3. Зависимость эффективного коэффициента самодиффузии урана в  $UO_2$  и  $UC$  от температуры [3]:

термически активируемая самодиффузия: 1 –  $UC$ ; 2, 3 –  $UO_2$ ; 4 –  $(UPu)O_2$ ;  
 ---,  – экстраполяция;  
 самодиффузия, активируемая облучением: +  $UO_2$ , +  $UC$  – самодиффузия;  
 5 – ползучесть  $(UPu)O_2$ ; 6–8 – ползучесть  $UO_2$ ; \* – ползучесть  $UC$ ; 9 – теоретический прогноз;  $\Delta$  – спекание  $UO_2$  ( $t < 400^\circ C$ )

при выгораниях  $10^{16} - 10^{18}$  дел/ $cm^3$ , а при температурах выше  $1000^\circ C$  теплопроводность уже не зависит от флюенса и выгорания. Отжиг топлива после низкотемпературного облучения до указанной глубины выгорания приводит практически к полному восстановлению теплопроводности.

Периодическое энергетическое возбуждение объема топлива при прохождении через него осколков деления приводит к частичному стиранию существующих дефектов в объеме трека и образованию новых; так, если принять объем трека равным примерно  $10^{-15} cm^3$  и скорость деления  $10^{13}$  дел/( $cm^3 \cdot c$ ), то каждый участок топлива попадает в зону прохождения осколка деления один раз за 100 с.

Энергетическое возбуждение объема топлива вызывает ускорение процессов, связанных с самодиффузией атомов, таких, например, как спекание, диффузионная ползучесть, фазовые превращения. На рис. 1.3 представлены данные различных авторов по влиянию облучения на коэффициент самодиффузии иона урана в  $UO_2$  и  $UC$ . Данные получены в результате обработки экспериментов по внутриреакторному спеканию, ползучести и самодиффузии и приведены к скорости деления  $10^{13}$  дел/( $cm^3 \cdot c$ ). Видно, что облучение топлива вызывает радиационно-активируемую самодиффузию, не зависящую от температуры на уровне  $D = 10^{-18} \div 2 \cdot 10^{-16} cm^2/c$ . Сравнение с внереакторной чисто

термической самодиффузией показывает, что радиационно-активируемая самодиффузия при данной скорости деления эквивалентна термически активируемой самодиффузии в интервале температур 1000–1200 °С. Ниже этой температуры коэффициент самодиффузии и скорости процессов, зависящих от нее (спекание, ползучесть), могут быть на несколько порядков выше таковых во вне реакторных условиях, не зависят от температуры и увеличиваются с увеличением скорости деления (предполагается, что последняя зависимость является линейной:  $D_U = \text{const} F$ ). Теоретические расчеты показывают, что основную роль в радиационно-активируемой самодиффузии играет наличие в топливе энергетических возбужденных зон при прохождении через него осколков деления, которые можно интерпретировать как расплавленные объемы со временем существования  $10^{-11}$  с и коэффициентом самодиффузии около  $10^{-4}$  см<sup>2</sup>/с, тогда усредненный коэффициент самодиффузии будет составлять  $10^{-17}$  см<sup>2</sup>/с.

Обращает внимание близость коэффициентов радиационной самодиффузии  $UO_2$  и  $UC$ , полученных в эксперименте, тогда как, в соответствии с положениями теории (§ 1.1), рассеяния энергии деления в  $UO_2$  и  $UC$  должны различаться из-за различия в значениях электро- и теплопроводности.

Вакансии, рожденные нейтронами и осколками деления, могут коагулировать и образовывать более сложные дефекты, в частности поры. Объединение пор с газообразными продуктами деления (ГПД), т. е. превращение пор в пузыри, в большой степени увеличивает их стабильность и приводит к устойчивым по отношению к отжигу изменениям ряда свойств: уменьшению плотности (так называемому газовому распуханию топлива); уменьшению теплопроводности, изменению механических свойств топлива. Степень указанных изменений в первую очередь зависит от глубины выгорания и температуры топлива.

Расщепление одного атома урана на два осколка приводит к увеличению объема материала — твердому распуханию топлива. Количественное определение твердого распухания, несмотря на кажущуюся простоту, затруднено, так как продукты деления ведут себя по-разному в зависимости от абсолютной температуры и ее распределения по сердечнику, структуры топлива, распределения энерговыделения и т. д. Продукты деления могут находиться в виде твердого раствора в матрице топлива, образовывать достаточно крупные включения второй фазы (тугоплавкие металлы); часть продуктов может образовывать газовые пузыри (Kr, Xe) или выходить под оболочку (газы, щелочные металлы, металлоиды).

Чаще всего твердое распухание в расчетах твэлов принимается равным 0,4% исходного объема на 1% выгорания. В некоторых расчетах высокотемпературных твэлов твердое распухание принимается различным для цезия и остальных продуктов деления (например, в [4] эти значения равны 0,47 и 0,19% на 1% выгорания соответственно).

### 1.3. Температурное воздействие на топливо при облучении

Температурные характеристики твэлов. Энергия деления реализуется в материале топлива в виде тепла. За время порядка  $10^{-10} - 10^{-11}$  с за счет теплопроводности происходит рассеяние энергии теплового пика и вещество возбужденного объема остывает до равновесного значения температуры материала топлива. Уровень равновесной температуры, а также температурные градиенты, возникающие в топливе при передаче тепла к поверхности теплосъема, определяются энергонапряженностью топлива, теплопроводностью материала, геометрическими параметрами твэла и условиями теплосъема.

По уровню температур на поверхности твэлы различного типа на основе тугоплавких соединений урана (см. табл. 1.2) можно разделить на две группы:

1) твэлы, имеющие температуру до  $700^\circ\text{C}$ , как правило, оболочечные (материал оболочки — цирконий, сталь); внешний слой топливных таблеток в процессе работы практически остается хрупким и прочным, не испытывает пластической деформации и каких-либо микроструктурных превращений;

2) твэлы с температурой поверхности выше  $1500^\circ\text{C}$ , имеют в качестве оболочки или покрытия тугоплавкие металлы и соединения. Примером таких твэлов являются катоды ТЭП. К этой группе также можно отнести микротвэлы с защитными покрытиями. В этих случаях наружный слой топлива работает при температуре выше температуры рекристаллизации и подвержен протеканию различных структурных процессов и заметному испарению.

Наибольшее количество исследований проведено с твэлами на основе  $\text{UO}_2$  при температуре на оболочке до  $600-700^\circ\text{C}$  для реакторов на тепловых и быстрых нейтронах (типы 1 и 2 табл. 1.2). Так как мощность, выделяемая в этих твэлах, велика, то по сечению топлива существуют практически все температурные зоны вплоть до температуры плавления  $\text{UO}_2$ . Результаты исследований, полученные на этих твэлах, могут быть использованы для понимания процессов в других более высокотемпературных типах твэлов.

Повышение температуры топлива приводит к увеличению тепловых колебаний атомов и, следовательно, к ослаблению межатомных связей, в результате чего меняются физико-механические свойства материала и протекают различные процессы. Основные из них следующие:

снижение высокотемпературной прочности;

повышение концентрации термических точечных дефектов (вакансий и внедренных атомов) и усиление диффузионной подвижности атомов, в результате чего возникают потоки атомов в силовых, температурных и концентрационных полях, происходят рост зерна и спекание, коагуляция и перемещение дефектов и примесей;

повышение испаряемости материала, что вызывает явление массопереноса из горячих зон твэла в более холодные через паровую фазу.

**Самодиффузия в топливе.** Самодиффузия атомов топливных соединений во многом определяет процессы, протекающие в топливе при высокой температуре, такие, как спекание, рост зерна, образование, рост и миграция пузырей, ползучесть, выход газообразных продуктов деления.

Самодиффузия атомов соединения зависит от температуры:

$$D_c = D_0 \exp(-Q/RT), \quad (1.1)$$

где  $D_0$  — коэффициент, не зависящий от температуры и определяемый свойствами решетки;  $Q$  — энергия активации процесса самодиффузии.

Механизм и параметры самодиффузии компонентов топливных композиций еще недостаточно изучены: значения  $D_c$  зачастую различаются на несколько порядков. Сложность и неоднозначность экспериментального определения параметров самодиффузии и интерпретации ее механизмов заключается в том, что топливные материалы представляют собой химические соединения, имеющие заметные области нестехиометричности, а также технологически загрязненные примесями металлоидов, особенно это относится к фазам внедрения ( $UC$ ,  $UC_2$ ,  $UN$ ), содержащим кислород. Эти обстоятельства влияют как на параметры и механизм диффузии металлоида, так и на параметры и механизм диффузии урана.

Ниже кратко изложены наиболее устоявшиеся представления о механизмах и параметрах самодиффузии в топливных соединениях.

*Самодиффузия кислорода и урана в  $UO_2$ .* В гиперстехиометрической  $UO_2$  — с малым избытком кислорода ( $UO_{2+x}$ ) дополнительные атомы кислорода располагаются в позициях внедрения и при низких температурах диффузия кислорода происходит по междоузлиям, энергия активации при этом равна энергии активации миграции внедренного атома и близка к 100 кДж/моль. При высоких температурах образуются термические пары Френкеля и преобладающей становится вакансионная диффузия. С увеличением содержания кислорода ( $x$ ) в  $UO_{2+x}$  энергия активации уменьшается, а коэффициент диффузии возрастает особенно значительно в области  $UO_{2,00} \rightarrow UO_{2,02}$  (рис. 1.4).

В гипостехиометрическом оксиде  $UO_{2-x}$  при низких температурах наблюдается вакансионная диффузия по имеющимся структурным вакансиям, при высоких температурах преобладает также вакансионная диффузия, но в энергию активации входит также энергия образования термической вакансии.

Ион урана в  $UO_2$  диффундирует, по-видимому, в основном по катионным вакансиям с энергией активации около 300–400 кДж/моль. Коэффициент диффузии урана зависит от содержания кислорода и увеличивается примерно как  $x^2$  (рис. 1.5).

*Самодиффузия в фазах внедрения.* Как правило, диффузию металлоида в фазах внедрения определяет наличие структурных дефектов

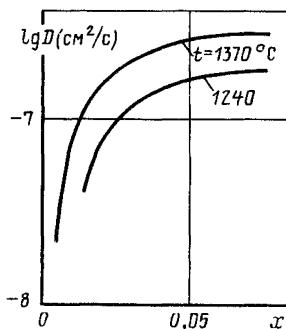


Рис. 1.4. Зависимость коэффициента диффузии кислорода в нестехиометрическом диоксиде урана [5]

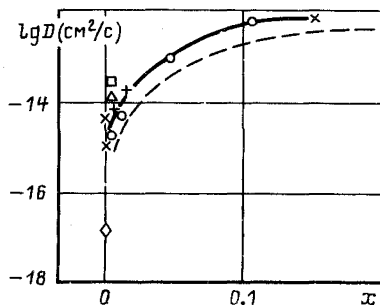


Рис. 1.5. Экспериментальная зависимость коэффициента диффузии урана в нестехиометрическом диоксиде урана при температуре 1500 °C [5]

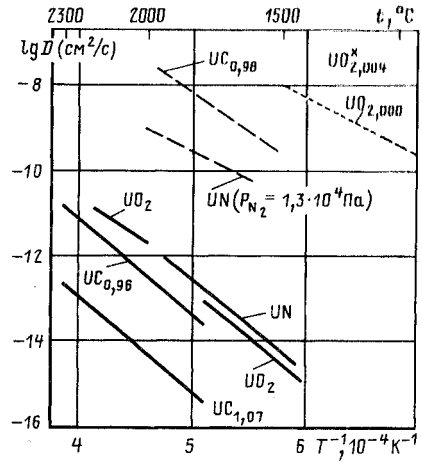
в неметаллической подрешетке, которых намного больше, чем термических дефектов, однако в карбидах и нитридах урана энергия активации диффузии углерода и азота существенно превышает 100 кДж/моль и колеблется от 250 до 350 кДж/моль. Предполагается, что в этом случае кроме структурных дефектов в неметаллической подрешетке участвуют термические вакансии в урановой подрешетке, которые могут использоваться неметаллами в процессе миграции; в этом случае температурный вклад в повышение коэффициента диффузии должен возрасти. Увеличение концентрации углерода сверх стехиометрической приводит к резкому уменьшению коэффициента диффузии углерода. Также на коэффициенты диффузии металлоида в большой степени влияют примеси кислорода и азота.

Самодиффузия урана происходит по вакансиям урановой подрешетки, однако на параметры диффузии урана в УС определяющее влияние оказывает концентрация углерода, которая, по-видимому, изменяет энергию связи ионов урана, что приводит к резкому снижению миграции урана при увеличении содержания углерода. Влияние углерода наряду с влиянием примесей кислорода, азота и некоторых металлов приводит к большому плохому контролируемому разбросу параметров диффузии урана в УС: значение  $Q$  колеблется от 100 до 700 кДж/моль, а коэффициенты диффузии различаются до шести порядков. Данных по диффузии в мононитриде существенно меньше, чем в УС.

Изложенные выше основные положения проиллюстрированы на рис. 1.6, где представлены температурные зависимости самодиффузии урана и металлоидов в  $UO_2$ , УС и UN. Из сравнения данных можно сделать следующие основные выводы.

Рис. 1.6. Зависимость самодиффузии в  $UO_2$ , UC, UN от температуры [1, 5]:

— уран в соединении;  
 - - -, х — металлоид в соединении;  
 ..... — экстраполяция



Во-первых, коэффициент самодиффузии металлоидов во всех соединениях, как и следовало ожидать, на несколько порядков выше, чем коэффициент самодиффузии урана; это означает, что скорость всех процессов, определяемых объемным переносом атомов соединения, таких, как рост зерен, спекание, диффузионная ползучесть, определяется диффузией более "медленного" иона урана.

Во-вторых, содержание металлоида в сильной степени определяет коэффициент самодиффузии урана. Из рисунка видно, что повышение содержания углерода в монокарбиде на 10 ат.% снижает коэффициент самодиффузии почти на два порядка. В диоксиде урана наблюдается обратная зависимость: увеличение содержания кислорода приводит к повышению самодиффузии урана.

В-третьих, уровни коэффициентов самодиффузии урана в  $UO_2$  и UN близки, а в  $UC_{1+x}$  примерно на два порядка ниже, что приводит к повышению температуры начала рекристаллизации и объемного спекания.

Самодиффузия может протекать не только в объеме, но и на поверхностях раздела: межзеренная (по границе двух или трех зерен) и поверхностная (поверхность, граничащая с паровой или газовой средой). Коэффициенты граничной самодиффузии (и вообще диффузии) могут на несколько порядков превышать коэффициенты объемной самодиффузии, так, для диоксида коэффициенты самодиффузии урана при температуре 1700 К равны: объемной  $10^{-14}$   $см^2/с$ ; межзеренной и поверхностной  $10^{-9}$   $см^2/с$ ; а при температуре 2000 К: объемной  $10^{-12}$   $см^2/с$ , межзеренной  $10^{-9}$   $см^2/с$ , поверхностной  $7 \cdot 10^{-7}$   $см^2/с$ .

Так как сечение, через которое происходит граничная диффузия, намного меньше сечения объемной диффузии, то суммарный эффект граничной диффузии является определяющим только при низких температурах ( $T < 0,5T_{пл}$ ), где  $T_{пл}$  — температура плавления топлива.

**Рост зерна.** Рост зерна материала при высоких температурах выражается в увеличении среднего размера зерна и сокращении площади границ зерен на единицу объема материала. Границы зерен представляют

собой протяженные области, обладающие дефектной структурой. Строгой модели границы зерна не существует, однако можно сказать, что дефектность и разупорядоченность расположения атомов на границе возрастают с увеличением разориентации кристаллографических направлений соседних зерен. Границы могут быть плоскими на гранях зерен и линейными на стыке трех зерен, линейные границы наиболее дефектны. Границы зерен являются эффективными источниками и стоками вакансий. Зерно в объеме представляет собой многогранник, в частности зерно  $UO_2$  может быть интерпретировано 14-гранником. Движение границы зерна происходит путем перехода атомов через границу под действием разности энергий связи атомов, которая зависит от ориентации и дефектности соседних зерен, кривизны границы, перепада температуры на границе и т. д.

В изотермических условиях рост зерна в общем виде может быть описан эмпирическим уравнением

$$L^p - L_0^p = k_0 \exp(-Q/RT) \tau, \quad (1.2)$$

где  $k_0$ ,  $p$  — константы;  $Q$  — энергия активации роста зерна;  $L_0$ ,  $L$  — размер зерна в исходном состоянии и в момент  $\tau$  соответственно.

Константы  $p$ ,  $k_0$ ,  $Q$ , определенные в различных работах, имеют значительный разброс:  $p = 2 \div 5$ ;  $Q = 240 \div 620$  кДж/моль,  $k_0 = 4 \cdot 10^6 \div 7 \cdot 10^{15}$  мкм <sup>$p$</sup> /с.

При наличии градиента температуры скорость роста зерна увеличивается вдоль градиента и разница скоростей может достигнуть большого значения, при этом образуется структура "удлиненных" зерен, отношение длины которых к диаметру может достигать 100.

Граница зерна обладает определенной энергией или поверхностным натяжением и при движении может захватывать примеси, в том числе газовые атомы и мелкие пузырьки, очищая от них зерно. Крупные включения могут задерживать локально на некоторое время движение границы до тех пор, пока кривизна границы, а значит и усилие отрыва в месте ее закрепления на включении, не станет настолько большой, что приведет к отрыву от включения.

Обогащение границы примесями (особенно инертными) приводит к снижению скорости ее движения по сравнению со скоростью движения в чистом материале, поэтому накопление продуктов деления в топливе должно снижать скорость роста зерна, даже несмотря на некоторое ускорение самодиффузии при облучении.

Количественные данные по этому вопросу малочисленны и противоречивы. Например, в [6] облучение  $UO_2$  до выгорания 0,38% при температуре 1750 °С в течение 6 мес привело к увеличению размера зерна с 7 до 18 мкм, а без облучения при температуре 1700 °С за 72 ч с 7 до 40 мкм. В [7] не наблюдалось различия в росте зерен без облучения и под облучением до размера зерен около 30 мкм, при больших размерах зерен скорость роста под облучением замедлялась.



Харгривс [8] рекомендует для определения замедления скорости роста зерен под облучением использовать формулу, аналогичную полученной для замедления роста зерен свинца введением примеси олова концентрацией  $C_t$ ,

$$\frac{dL}{d\tau} = \left( \frac{dL}{d\tau} \right)_0 / (1 + \theta C_t)^a,$$

где  $a$  и  $\theta$  — константы ( $\theta = 5 \cdot 10^5$ ;  $a$  для  $UO_2$  близко к 1),  $(dL/d\tau)_0$  — скорость роста зерен в отсутствие газообразования; концентрация газа для топлива в процессе облучения

$$C_t = \beta\tau,$$

где  $\beta$  — скорость рождения газа,  $\beta = yF_d$ ,  $y$  — число атомов ГПД на один акт деления (см. табл. 1.3),  $F_d$  — число делений в единицу времени. Скорость выноса газа на границу  $dN_r/d\tau$  можно записать в виде [8]

$$\frac{dN_r}{d\tau} = \frac{dV_{\text{зер}}}{d\tau} \frac{\beta\tau}{S_{\text{гр}}} - \eta N_r = \frac{\beta\tau}{2} \frac{dL}{d\tau} - \eta N_r, \quad (1.3)$$

где член  $\eta N_r$  — характеризует перерастворение газа из межзеренных пузырей обратно в зерно под действием облучения (см. § 2.1);  $V_{\text{зер}}$  — объем зерна;  $S_{\text{гр}}$  — площадь границы зерна.

**Перенос массы путем испарения—конденсации.** В том случае, если температура поверхности топлива достаточно высока (для  $UO_2$   $t > 1600 \div 1700$  °С), происходит заметное испарение топлива, его перенос через паровую фазу и конденсация в "холодных" частях твэла. Основные явления в твэле, определяемые испарением, следующие: массоперенос топлива с поверхности топливного столба на внутреннюю поверхность оболочки, при наличии зазора (твэл типа 3, табл. 1.2); массоперенос вдоль центрального канала; вынос топлива за пределы активной зоны, например в отражатель или вентиляционные системы; перемещение полостей и пор в топливе в поле температур.

*Испарение топлива.* Давление насыщенного пара вещества изменяется от температуры по экспоненциальному закону:

$$p_H = A \exp(-Q/RT), \quad (1.4)$$

где  $Q$  — энергия активации испарения, близкая к теплоте образования соединения. Скорость испарения с открытой поверхности образца, нагреваемого в вакууме,

$$j_0 = \alpha S p_H \sqrt{M/(2\pi RT)}, \quad (1.5)$$

где  $\alpha$  — коэффициент конденсации;  $S$  — реальная площадь поверхности испарения (с учетом шероховатости поверхности);  $M$  — молекулярная масса пара.

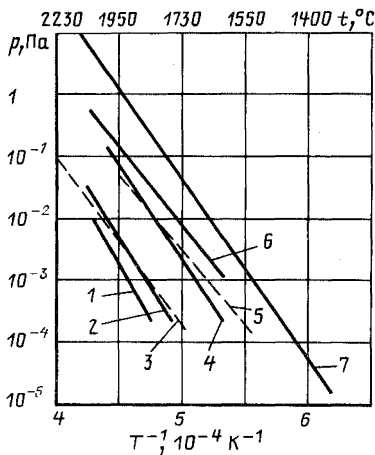


Рис. 1.7. Давление пара урансодержащей фазы над  $\text{UO}_2$ ,  $\text{UC}$  и  $\text{UN}$  и азота над  $\text{UN}$  [1]:

1 -  $\text{UC}_{1,078}$ ; 2 -  $\text{UC}_{0,995}$ ; 3 -  $\text{UC}_2$ ; 4 -  $\text{UO}_2$ ; 5 -  $\text{UC}_{0,93}$ ; 6 -  $\text{UN}$ ; 7 -  $\text{N}_2$  над  $\text{UN}$

Диоксид урана в глубоком вакууме или в среде чистого нейтрального газа плавится без разложения и испаряется в основном в виде  $\text{UO}_2$ . Давление пара над стехиометрическим диоксидом урана представлено в зависимости от температуры на рис. 1.7. При увеличении содержания кислорода

в диоксиде или в окружающей среде происходит образование летучего комплекса  $\text{UO}_3$ , что резко повышает равновесное давление урансодержащего пара над диоксидом. В этом случае давление  $\text{UO}_3$  (в атмосферах) в зависимости от температуры и давления кислорода в окружающей среде  $p_{\text{O}_2}$  определяется выражением [9]

$$\lg p_{\text{UO}_3} = -13\,100/t + 4,73 + 0,5 \lg p_{\text{O}_2}.$$

При  $p_{\text{O}_2} \approx 100$  Па и  $t = 1600$  °С  $p_{\text{UO}_3} \approx 20$  Па, в то время как давление пара над стехиометрическим диоксидом при этой температуре составляет около  $10^{-4}$  Па. Резкое увеличение летучести и ухудшение других свойств диоксида при избытке кислорода привело к необходимости ввести в технологию изготовления таблеток из диоксида урана требования по стехиометрии и жесткого ограничения присутствия кислорода в рабочих средах.

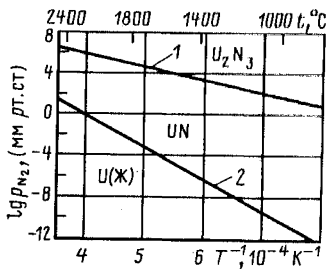
Из монокарбида урана состава  $\text{C}/\text{U} < 1,1$  испаряется преимущественно уран, пока состав не обогатится углеродом до  $\text{C}/\text{U} = 1,1$ , после чего происходит конгруэнтное испарение, при этом углерод испаряется преимущественно в виде  $\text{UC}_2$ .

Как видно из рис. 1.7, давление пара урана уменьшается при увеличении содержания углерода в карбиде. Испаряемость дикарбида урана несколько выше испаряемости монокарбида состава  $\text{UC}_{1+x}$ .

Нитрид урана при высоких температурах разлагается на металлический уран и азот, рис. 1.8. При температуре плавления  $\text{UN}$  равновесное давление азота составляет 0,25 МПа. Из рисунка видно, что фаза  $\text{UN}$  устойчива в широком интервале значений давления азота. В спеченных таблетках  $\text{UN}$  эффект разложения практически заметен при температурах выше 1600–1700 °С; эксплуатация  $\text{UN}$  при меньших температурах

Рис. 1.8. Области устойчивости фаз в системе U-N [10]:

1, 2 – границы устойчивости при высоком и низком давлениях азота



может проводиться длительное время в вакууме или в среде нейтральных газов; при больших температурах необходимо создавать над топливом повышенное давление азота. Образующийся при разложении UN жидкий уран может взаимодействовать с оболочкой и переконденсироваться в холодные части твэла, образующийся азот может также взаимодействовать с оболочкой. Разложение UN и связанные с этим эксплуатационные и конструкционные трудности являются основным препятствием для использования нитрида в высокотемпературных твэлах.

Как ясно из рис. 1.7, испаряемость топливных соединений уменьшается в соответствии с рядом UN,  $UO_2$ ,  $UC_2$ ,  $UC_{1+x}$ , при этом различие достигает четырех порядков.

**Массоперенос на оболочку.** Скорость массопереноса через зазор зависит от многих факторов, прежде всего от давления насыщенного пара топлива при температурах поверхностей топлива в зазоре и от среды в зазоре.

В том случае, если зазор вакуумный, т. е.  $\lambda/\delta_{заз} \gg 1$ , где  $\lambda$  – средний свободный пробег молекулы топлива;  $\delta_{заз}$  – ширина зазора, то, предполагая коэффициент аккомодации  $\alpha$  и площадь  $S$  равными для обеих поверхностей, поток можно оценить по формуле

$$j = \alpha S \sqrt{\frac{M}{2\pi R}} \left[ \frac{P_{н.г}}{\sqrt{T_g}} - \frac{P_{н.х}}{\sqrt{T_x}} \right], \quad (1.6)$$

где  $P_{н.х}$ ,  $T_x$ ,  $P_{н.г}$ ,  $T_g$  – давление насыщения и температура для "холодной" и "горячей" поверхностей соответственно.

Для зазора, заполненного неконденсирующимся газом (например, гелием или продуктами деления – ксеноном, криптоном), массоперенос определяется коэффициентом диффузии пара  $D_v$  в газовой среде и шириной зазора  $\delta_{заз}$ . В некотором приближении для малых перепадов температуры на зазоре массоперенос может быть оценен по формуле, аналогичной (1.13). Переход от вакуумного массопереноса к диффузионному при зазорах, равных нескольким десяткам долям миллиметра, происходит при давлении около  $1,3 \cdot 10^4$  Па.

В диффузионной области уменьшение скорости испарения с ростом давления описывается формулой вида

$$j_2 = \frac{j_1}{(p_2/p_1)^m}, \quad (1.7)$$

где  $j_1$  и  $j_2$  — скорости испарения при давлениях  $p_1$  и  $p_2$  и  $m = 0,5 \div 1$ .

Кроме массопереноса путем испарения—конденсации при температурах ниже 1000–1300 °С становится заметным вклад переноса топлива через вакуумный зазор за счет радиационного распыления (см. § 2.2).

*Массоперенос вдоль центрального канала.* Кроме радиального массопереноса на оболочку в твэле происходит осевой массоперенос, обусловленный перепадом температуры по длине твэла. При использовании кольцевых топливных таблеток перенос происходит в основном вдоль осевого канала, при этом по его длине образуются зоны испарения и конденсации, которые формируют профиль канала. В общем случае поверхность канала стремится к изотермической поверхности.

Поток пара вдоль цилиндрического канала с испаряющимися стенками вдали от его концов при условии медленного изменения температуры и давления вдоль канала, что, как правило, реализуется в твэлах, может быть представлен в виде [11]

$$j_z = -\frac{8}{3} r^3 \sqrt{\frac{\pi M}{2R}} \frac{d}{dz} \frac{p_H}{\sqrt{T}}, \quad (1.8)$$

где  $r$  — радиус канала;  $z$  — координата вдоль оси канала;  $p_H$  и  $T$  — давление насыщенного пара и температура вдоль канала.

Для нахождения плотности радиального потока массы на стенке канала (поток конденсации) можно воспользоваться уравнением

$$j_r = -\frac{1}{2\pi r} \frac{dj}{dz} = -\frac{8}{3} r^3 \sqrt{\frac{\pi M}{2R}} \frac{d^2}{dz^2} \frac{p_{HRC}}{\sqrt{T}}. \quad (1.9)$$

Для твэлов термоэмиссионного преобразователя с температурой центра канала около 2000 °С и отверстием  $r \approx 1$  мм зона конденсации топлива располагается в интервале температур 1700–1500 °С. При больших временах и температурах осевой массоперенос может вызвать перекрытие центрального канала, что, в свою очередь, может привести к накоплению в полости газообразных продуктов деления и деформации твэла.

В том случае, если таблетки топлива изначально не имеют центрального отверстия, в результате радиального массопереноса механизмом испарения—конденсации (радиальной перекоденсации) топлива на оболочку может образоваться центральная полость; при отсутствии теплосмен такая полость, по-видимому, является герметичной.

**Миграция пузырей и пор.** При высоких температурах ( $t > 1650^\circ\text{C}$ ) наблюдается миграция пузырей и пор в топливных материалах. В общем виде скорость миграции  $v_{\text{п}} = GB$ , где  $G$  — движущая сила, которая возникает в результате воздействия полей напряжений различного рода и градиента температуры;  $B$  — подвижность, зависящая от свойств среды и прежде всего самодиффузии и испаряемости; для атомной диффузии  $B = D/kT$ .

Перемещение пузырей и пор в топливе можно описать тремя механизмами: поверхностной диффузией ионов урана и металлоида по поверхности пузыря или поры из горячей зоны в более холодную; объемной диффузией и испарением с горячей стороны пузыря или поры и конденсацией на холодной стороне. Во всех случаях движение происходит вдоль градиента температуры в сторону повышения температуры. Расчеты показывают, что объемная диффузия может создать скорость миграции пор на несколько порядков меньше, чем поверхностная диффузия и испарение — конденсация.

**Миграция поверхностной диффузией.** Механизм поверхностной диффузии преобладает для пузырей с малыми размерами до определенного критического радиуса пузыря, который зависит от  $T$ ,  $\nabla T$ , формы пузыря и т. д. Для диоксида урана критический радиус пузыря при температуре около  $1700^\circ\text{C}$ , как установлено расчетами и подтверждено экспериментами, составляет примерно 2 мкм. Сила воздействия градиента температуры на пузырь радиуса  $r$ , в случае миграции поверхностной диффузией, пропорциональна объему пузыря [12]:

$$G_{\nabla T} = \frac{4\pi r^3}{3\Omega} \frac{Q_s^*}{T} \left( \frac{dT}{dx} \right)_{\text{пора}}, \quad (1.10)$$

где  $\Omega$  — молекулярный объем;  $Q_s^*$  — энергия активации поверхностной диффузии;  $(dT/dx)_{\text{пора}}$  — градиент температуры в поре. Для малых пузырей соотношение градиентов температур в поре и матрице близко к виду [13]

$$(dT/dx)_{\text{пора}} = (3/2) (dT/dx)_{\text{матр.}}$$

Скорость перемещения пузыря с постоянным объемом обратно пропорциональна его радиусу [14]:

$$v_{\text{п}} = \frac{2D_s \delta Q_s^*}{rkT^2} \left( \frac{dT}{dx} \right)_{\text{пора}}, \quad (1.11)$$

где  $\delta$  — слой атомов, диффундирующих по поверхности пузыря или поры.

В действительности эффективность поверхностной диффузии  $D_s$  может быть ниже из-за некоторых факторов, существующих в реальных материалах: заполнения пузырей газом, наличия примесей и продуктов

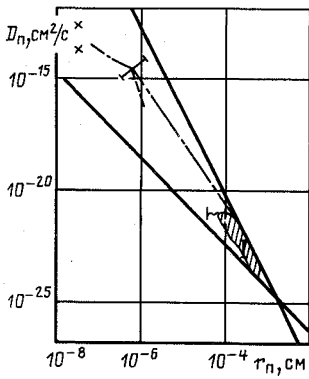


Рис. 1.9. Зависимость условного коэффициента диффузии пузырей от их радиуса при температуре 1800 °С [15]:

—, - - - - хаотическое движение пузырей; — · —, ~~~~~, ▨ - миграция пузырей под воздействием градиента температуры; I - релаксация поверхности; x - диффузия атомов ксенона

деления, выходящих на поверхность пузыря, агрегации пузырей с дефектами и т. д.

На рис. 1.9 представлена зависимость условного коэффициента диффузии пузырей  $D_{п}$  от радиуса, определенная по аналогии с атомной диффузией из общих закономерностей:  $v_{п} = G \nabla T B$  и  $B = D/(kT)$ , тогда:

$$D_{п} = \frac{v_{п} k T}{G \nabla T} = \frac{3 v_{п} \Omega k T^2}{4 \pi r^3 Q^*} / \left( \frac{dT}{dx} \right)_{\text{пора}}, \quad (1.12)$$

где принято  $Q^* = 419$  кДж/моль, что удовлетворяет в определенной степени любому механизму миграции. Как видно из рисунка, значения  $D_{п}$ , рассчитанные с использованием экспериментальных данных по измерению миграции пузырей в температурном поле, хаотическом движении пузырей и т. д., лежат в области между теоретическими зависимостями для миграции пузырей поверхностной диффузией и парофазной диффузией. До  $r \approx 10^3$  см преобладает первый механизм, для пузырей большого размера — второй механизм.

Маленькие пузыри и поры ( $r < 1$  мкм) движутся без искажения сферической формы и могут удерживаться дефектами структуры, такими, как дислокация и граница зерна, с постоянной силой, характерной для данного дефекта. В процессе роста пузыря сила воздействия температурного градиента увеличивается согласно (1.10). Когда  $G \nabla T$  становится больше удерживающей силы, пузырь отрывается от дефекта и начинает мигрировать в температурном поле. Размеры удерживаемых пузырей, теоретически рассчитанные для дислокаций и границ зерен, равны 500 и 5000 Å соответственно для широкого интервала  $T$  и  $dT/dx$ .

*Движение пузырей путем механизма испарение-конденсация.* Механизм испарение-конденсация определяет движение крупных пор ( $r \gtrsim 1$  мкм); эти поры, как правило, являются газонаполненными, и перенос массы с горячей стороны пузыря на холодную состоит из

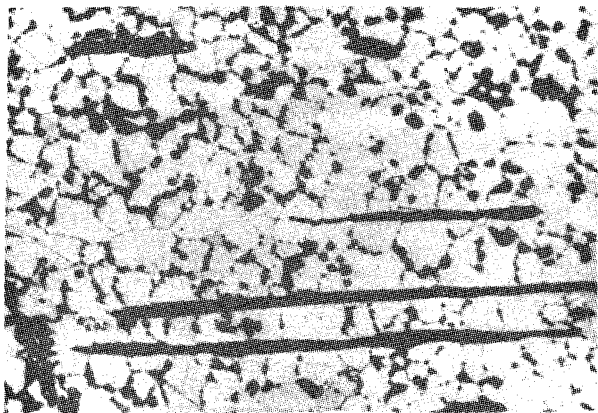


Рис. 1.10. Радиальные цилиндрические поры в облученной  $UO_2$

двух процессов: испарения—конденсации и диффузии пара топлива через газовую фазу. Скорость массопереноса, а значит, и движение поры контролируются наиболее медленным процессом.

Движение крупной поры путем испарения—конденсации зависит от абсолютной температуры топлива, градиента температуры, формы поры и давления конденсирующегося газа в поре. В том случае, если скорость массопереноса определяется диффузией пара, скорость движения пузыря без изменения его формы определяется выражением, предложенным Николсом [14],

$$v_{\text{п}} = \frac{D_{\text{г}} \Omega \Delta H_{\text{г}}}{k^2 T^3} p_{\text{г}} \left( \frac{dT}{dx} \right)_{\text{пора}}, \quad (1.13)$$

где  $p_{\text{г}}$  — давление пара топлива;  $\Delta H_{\text{г}}$  — теплота парообразования;  $D_{\text{г}}$  — коэффициент диффузии пара в газе.

В действительности в больших пузырях (порах) при движении происходит изменение формы за счет сложного распределения температуры по поверхности. Сенс [16] показал, что сферическая пора стремится вытянуться в цилиндр вследствие большей скорости перемещения переднего края поры (направленного к центру сердечника); цилиндрическая пора (ось которой направлена вдоль градиента) вытягивается с еще большей скоростью (рис. 1.10). Особый интерес представляют пузыри в виде дисков, плоскость которых перпендикулярна градиенту температуры. На практике такие поры (пузыри) имеют форму линз (рис. 1.11), которая не меняется при их движении. Перемещение линзообразных пузырей и пор (ЛОП) к центру топливного сердечника является одной из причин образования столбчатых зерен (рис. 1.11) и эффек-

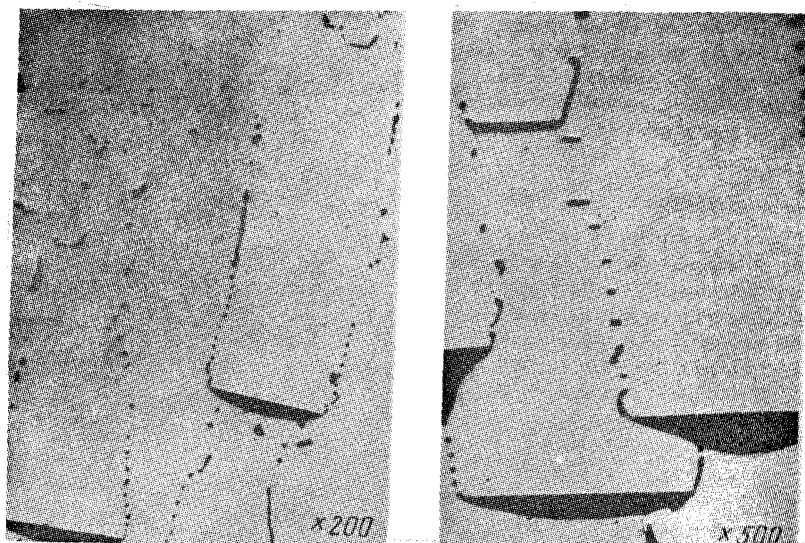


Рис. 1.11. Линзообразные поры, движущиеся к центру топливной таблетки

тивным механизмом очистки топлива от ГПД при высоких температурах ( $t > 1700^\circ\text{C}$ ).

Источником ЛОП обычно являются трещины, которые могут возникнуть при переменных температурных режимах работы твэла, а также полости на границе оболочка—топливо в твэлах третьего типа и технологические пустоты и рыхлоты топлива, изготовленного методами порошковой металлургии, размер линзообразных пор может быть значительным (около  $10^2$  мкм).

Скорость движения ЛОП зависит от разницы температур на горячей и холодной стороне, состава и давления неконденсирующегося газа в поре.

Клемент [17] предложил выражение для скорости перемещения ЛОП в широком интервале параметров с учетом протекания процессов испарения—конденсации и диффузии пара через газ, заполняющий пору:

$$v_{\Pi} = \frac{1}{\rho_M} \frac{K_D K_E}{K_D + K_E} \Delta p_{\Pi}, \quad (1.14)$$

где  $\rho_M$  — плотность матрицы;  $K_D = MD_v/dRT$  — коэффициент, определяющий диффузионную составляющую массопереноса в случае заполнения поры нейтральным газом;  $K_E = (1/2)\sqrt{M/(2\pi RT)}$  — коэффициент, определяющий процесс испарения—конденсации;  $\Delta p_{\Pi}$  — перепад давления насыщенного пара при температурах передней и задней стенок поры;  $M$  — молекулярная масса пара топлива; коэффициент конденсации равен единице. Клемент принимает, что пора не теплопроводна и  $(dT/dx)_{\text{пора}} \approx (l/d) (dT/dx)_{\text{матр}}$ , где  $l$  — диаметр, а  $d$  — тол-



щина линзообразной поры. Скорости массопереноса, а значит, и  $v_{\text{п}}$  определяются меньшим коэффициентом; для вакуумной поры  $K_E \ll K_D$  и уравнение (1.14) совпадает с уравнением для массопереноса через зазор (1.6); для газонаполненной поры  $K_D \ll K_E$  и  $v_{\text{п}} = (1/\rho_M) \times X [MD_v/(kT)] \Delta p_{\text{н}}$ , при этом результаты совпадают с результатами, полученными по (1.13).

Переход от одного определяющего механизма к другому зависит от давления и молекулярной массы заполняющего газа, а также толщины поры: так, при  $d = 8$  мкм для тяжелого газа (Xe) диффузия становится определяющей при  $p_{\text{газа}} > 30$  кПа, а для легкого газа (He) при  $p_{\text{газа}} > 200$  кПа [17].

Скорость линзообразных пор в  $10-10^3$  раз выше скорости мелких сферических и цилиндрических пор, что вызвано в основном большим перепадом температуры на линзообразной поре. Скорость перемещения и форма линзообразных пор дает возможность предположить, что давление газа в них меньше, чем равновесное давление, определяемое поверхностным натяжением (см. § 2.1).

Большое влияние на скорость перемещения поры оказывает отклонение стехиометрии  $\text{UO}_2$  в сторону избытка кислорода, при этом происходит резкое увеличение давления паров за счет появления оксида  $\text{UO}_3$ , например для  $\text{UO}_{2,01}$  при  $T = 2000$  К скорость миграции поры будет почти в 100 раз выше, чем для  $\text{UO}_{2,00}$ . Экспериментальные результаты ближе к расчетам для гиперстехиометрического диоксида урана.

На рис. 1.12 представлены температурные зависимости скорости миграции ЛОП, полученные экспериментальным и расчетным путями. Наблюдается достаточно хорошее согласие экспериментальных и расчетных результатов. Интересен следующий экспериментально наблюдаемый факт. Скорость роста столбчатых зерен за счет движения ЛОП с малым давлением газа ( $p_{\text{газа}} \approx 0,1$  МПа) близка к скорости роста удлиненных зерен за счет перемещения границ [18].

Ряд экспериментальных исследований посвящен проверке возможности хаотического движения мелких пузырей в топливной матрице в изотермических условиях. До настоящего времени этот вопрос однозначно не решен, однако последнее исследование Бейкера [20], по-видимому, отвергает возможность подобного движения, а наблюдавшаяся в некоторых работах с помощью электронного микроскопа движение пузырьков объясняется микронеоднородностями температурных полей и полей напряжений.

**Изменение структуры топлива под облучением.** Характер структуры и кинетика ее изменения во многом определяют поведение топлива в твэле: миграцию продуктов деления, выход их под оболочку, жесткость топлива и, в конечном результате, распухание твэла. Состояние структуры должно учитываться при составлении расчетных моделей

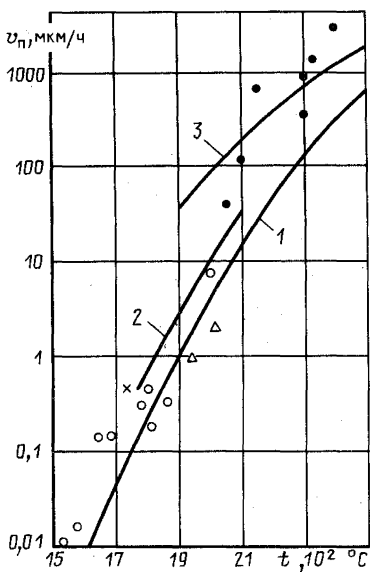


Рис. 1.12. Зависимость скорости миграции линзообразных пор в  $\text{UO}_2$  от температуры:

○ – рост столбчатых зерен при  $\nabla t = (1,6 \div 2,4) \cdot 10^3 \text{ }^\circ\text{C/cm}$  (эксперимент) [19]; x, 1 – расчет по модели испарение–конденсация по данным [16] и [19] соответственно (x – для  $\nabla t = 2,5 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{C/cm}$ ); 2 – расчет по диффузионной модели [19]; 3 – рост столбчатых зерен в результате движения ЛОП без облучения при  $\nabla t = (3 \div 5) \cdot 10^3 \text{ }^\circ\text{C/cm}$  [18]; Δ – смещение пузырей [15] при  $\nabla t = 1 \cdot 10^3 \text{ }^\circ\text{C/cm}$ ; ● – рост столбчатых зерен в результате миграции границ без облучения [18]

напряженно-деформированного состояния твэла как целого. Кроме того, создадим определенный типа структуры можно воздействовать на свойства топлива.

Основные закономерности изменения структуры рассмотрим на примере диоксида урана. Исходные таблетки (компактный диоксид) готовятся методами порошковой металлургии; плотность спеченного диоксида, как правило, лежит в интервале 90–97% теоретической, кроме специально изготовленных сердечников с повышенной пористостью. Размер зерна колеблется в пределах 3–10 мкм. Поры спекания – крупные ( $L \approx 2 \text{ мкм}$ ), располагаются как внутри, так и на границе зерен (рис. 1.13). В первом приближении можно считать, что до плотности около 93% теоретической преобладает открытая пористость, выше – закрытая. В объеме таблетки могут встречаться локальные рыхлые участки с повышенным содержанием пор. Поры спекания содержат газ, в котором проводилось спекание ( $\text{H}_2$ , Ar, Ne).

При высоких эксплуатационных температурах происходит изменение структуры топлива путем протекания термически активируемых процессов массопереноса материала топлива, таких как: испарение–конденсация, объемная и поверхностная диффузия. Все эти процессы весьма чувствительны к температуре.

На рис. 1.14 показана типичная микроструктура поперечного сечения твэла первого типа после облучения. В общем случае сечение содержит пять структурных зон.

Внешняя, или первая зона содержит зерна исходного размера и формы, граница зоны соответствует температуре 1100–1200  $^\circ\text{C}$ . Вторая

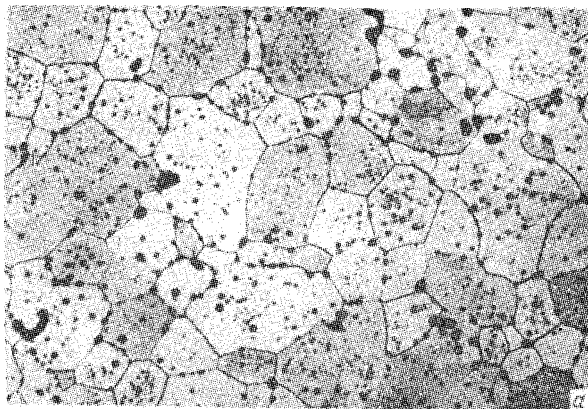


Рис. 1.13. Микроструктура необлученного диоксида урана, спеченного при температуре 1800 °С, полученная методами оптической металлографии (а) и репликовой электронной микроскопии (REM) (б)

зона состоит из выросшего зерна практически равноосной формы. При достижении температуры около 1700 °С начинает проявляться ускорение роста зерна в направлении градиента температуры и зона равноосных зерен переходит в зону выросших удлинённых зерен. Наряду с ростом зерен путем перемещения границ в этой зоне происходит также формирование линзообразных пор и образование столбчатых зерен в результате их движения. Кроме линзообразных пор третья зона пронизана цилиндрическими порами, имеющими большую протяженность; границы столбчатых зерен зачастую имеют трещиноподобную форму.



Рис. 1.14. Характерные структурные зоны в таблетке диоксида урана после облучения в твэлах первого и второго типов (температура оболочки меньше  $700^{\circ}\text{C}$ ) [21]

Четвертая зона образована из расплавленного диоксида урана и близка по структуре третьей зоне, граница ее соответствует температуре плавления  $\text{UO}_2$  ( $t_{\text{пл}} = 2800^{\circ}\text{C}$ ).

Пятая зона представляет собой осевую полость, которая образуется в сплошной таблетке вследствие радиального движения пористости, особенно — линзообразных пор к центру сердечника. В том случае, если исходные таблетки имели отверстие, то его диаметр формировался в процессе эксплуатации путем радиально направленного выхода пор и осевого массопереноса топлива механизмом испарения—конденсации.

По всему сечению топлива располагаются кольцевые и радиальные трещины, количество которых зависит от температурного градиента.

В каждом конкретном типе твэла могут отсутствовать некоторые зоны или даже образовываться новые, как это происходит в твэле ТЭП.

Степень изменения структуры в процессе работы топлива определяется не только режимом его работы, но и свойствами топлива и прежде всего диффузионной подвижностью ионов, испаряемостью и теплопроводностью. Последнее свойство влияет на структуру через градиент температуры, который при одинаковой мощности, выделяемой в твэле, тем выше, чем меньше теплопроводность.

Как видно из табл. 1.1, из рассматриваемых высокотемпературных топлив  $\text{UO}_2$  имеет минимальную теплопроводность и наибольшую подвижность и испаряемость ионов урана (то и другое определяется энергией связи атома урана в решетке). Монокарбид урана (особенно засте-

хиометрического состава) обладает самой высокой теплопроводностью, низкими давлением пара и коэффициентом диффузии иона урана. UN имеет высокую теплопроводность и промежуточные по сравнению с  $UO_2$  и UC значения давления пара и коэффициента самодиффузии. В указанной последовательности изменяется и степень перестройки структуры: максимальная в  $UO_2$  и минимальная в UC. Монокарбид урана практически не образует столбчатой структуры (в том числе удлинённых зерен и зоны переконденсации). Мононитрид образует столбчатую структуру, но в меньшей степени, чем  $UO_2$ , или за более длительный период времени.

#### 1.4. Механическое воздействие на топливо при облучении. Взаимодействие топлива с оболочкой

**Термические напряжения.** В топливе при нестационарных тепловых процессах (пуске и остановке реактора), а также при наличии температурных перепадов возникают термические напряжения.

Разрушение керамического топлива под действием термических напряжений происходит, как правило, при сравнительно низких температурах ( $T < 0,5T_{пл}$ ), при которых керамика обладает незначительной пластичностью и разрушение носит хрупкий характер. При более высоких температурах термические напряжения могут релаксировать за счет пластической деформации или ползучести.

В процессе работы на высокотемпературном режиме трещины, существующие в топливе, "залечиваются" (спекаются), а термические напряжения релаксируют. При остановке реактора перепад температуры исчезает, это приводит к возникновению термических напряжений противоположного знака, а понижение общего уровня температуры приводит к хрупкому разрушению керамического топлива, если  $\sigma_{терм} > \sigma_B$ . При хрупком состоянии топлива термические напряжения пропорциональны следующему комплексу физико-механических и теплофизических свойств материала:

$$\sigma_{терм} \sim aE/[\lambda(1 - \nu)],$$

где  $a$  — температурный коэффициент линейного расширения;  $E$  — модуль упругости;  $\nu$  — коэффициент Пуассона;  $\lambda$  — теплопроводность.

Таким образом, радиальные и кольцевые трещины, наблюдаемые при послереакторных исследованиях, образуются при остывании топлива до температур ниже  $0,5T_{пл}$ . Образованию трещин способствует наличие столбчатой структуры топлива в некоторых участках или по всему сечению сердечника. Как правило, границы между большими столбчатыми кристаллами содержат много газовых пузырей и пустот, которые при охлаждении могут стимулировать образование сквозных трещин.

**Механическое взаимодействие топлива с оболочкой.** Взаимодействие топлива с оболочкой и возникающие при этом напряжения и деформации являются наиболее важными процессами, определяющими во многом работоспособность твэла. В твэле "монолитного" типа контакт топлива с оболочкой создается технологически и существует с самого начала эксплуатации твэла, в твэле "контейнерного" типа в начальный момент существует технологический зазор, который может исчезнуть при эксплуатации.

В твэле "контейнерного" типа взаимодействие топлива с оболочкой может возникнуть в результате протекания следующих процессов:

а) большего по сравнению с оболочкой термического расширения топлива за счет более высокой средней температуры топлива и разницы температурных коэффициентов линейного расширения. Деформация оболочки в этом случае может быть предотвращена правильным выбором технологического зазора;

б) радиальной переконденсации топлива на оболочку для твэлов третьего типа (табл. 1.2). Скорость переконденсации можно замедлить, если заполнить твэл неконденсирующимся газом;

в) распухания топлива.

Топливо распухает в результате образования твердых продуктов деления и газообразных продуктов деления, выделяющихся внутри топлива в виде пузырей или создающих давление в герметичных полостях сердечника и твэла. Кроме указанных видов распухания возможно также распухание топлива от "технологических" газов, содержащихся в порах и в решетке топливных материалов. В качестве технологических газов могут рассматриваться кислород, азот, оксиды углерода, пары воды, газ, в котором происходило спекание таблеток сердечника (например, He, Ar, H<sub>2</sub>). Все эти газы, кроме нейтральных, могут растворяться в топливе и при высоких температурах выходить из таблеток, однако при быстром подъеме температуры возможно образование местных выпучиваний в районах скопления пор — рыхлых местах. В принципе возможно также вакансионное распухание топлива, аналогичное наблюдаемому в чистых металлах под облучением, однако при наличии газообразных продуктов деления, практически не растворимых в решетке, оно не имеет самостоятельного значения.

Взаимодействие топлива и оболочки приводит к возникновению в них полей напряжений и деформаций. При сплошном сердечнике деформация топлива может происходить только вследствие изменения объема пор и газовых пузырей, при этом изменяется давление газа в них. Если сердечник имеет полости (например, центральное отверстие), то будет происходить деформация полостей, приводящая к релаксации напряжений.

Оболочка действует на топливо не только в радиальном, но и в осевом направлении из-за сцепления топлива с оболочкой (трения). Кро-

ме сжимающих напряжений в топливе могут возникнуть и растягивающие, как радиальные, так и осевые; например, в твэлах третьего типа при наличии сцепления топлива с оболочкой в момент охлаждения твэла.

*Механический и термический "храповик"*. В охлажденном после очередного энергетического цикла топливе существуют кольцевые и радиальные трещины, образующиеся в результате воздействия термических напряжений или неполной переконденсации топлива на оболочку. При повторном выходе твэла на номинальную мощность поверхности трещин, а также отдельные фрагменты топлива могут смещаться по отношению к первоначальному положению, что приводит к увеличению объема сердечника и деформации оболочки, этот процесс повторяется при каждом цикле работы реактора. Подобный механизм может быть назван "механическим храповиком".

Наряду с "механическим храповиком" существует "термический храповик" для твэлов третьего типа, который заключается в следующем: в твэлах при высокой температуре происходит переконденсация топлива на оболочку и исчезает исходный зазор. При последующем подъеме температуры при термическом расширении топлива, большим термического расширения оболочки, происходит деформация последней. При снижении температуры топливо может отрываться от оболочки и затем снова переконденсироваться. Колебания мощности твэла приводят к наращиванию деформации оболочки, непременным условием при этом должен быть отрыв топлива от оболочки при понижении температуры в цикле.

**Микронапряжения.** Топливо, как и любой материал, обладает большим количеством микродефектов, сравнимых с межатомным расстоянием или размерами зерна материала. В процессе изготовления сердечника возникают такие микродефекты, как границы зерен, примесные атомы и включения, поры, дислокации; под воздействием высокой рабочей температуры возникают вакансии и междоузельные атомы, а одновременное приложение напряжений вызывает появление дислокаций и микротрещин. Большой вклад в образование микродефектов вносит облучение, в результате которого появляются дислокационные петли, поры, газовые пузыри, междоузельные атомы, вакансии, примесные атомы.

Большинство микродефектов образуют вокруг себя поля упругих напряжений, значения которых и области воздействия зависят от характера дефекта и упругих свойств среды. Так, отдельные вакансии, скопления вакансий, точечные включения и неравновесные газовые поры вызывают в окружающей среде напряжения различных знаков, приводящие к упругому смещению атомов, изменяющемуся в пространстве как  $1/r^3$ , где  $r$  — расстояние от полости в сферических координатах. Поле напряжений и смещений от дислокаций обладает большим дальним действием и изменяется приблизительно как  $1/r$ . Между-

узельные атомы вызывают упругую деформацию в среде примерно на два порядка большую, нежели деформация от вакансий и т. д.

Указанные микронапряжения, а также остаточные напряжения технологического происхождения, как правило, не вызывают разрушения материала, однако при высоких температурах они во многом определяют процессы образования и роста пор и газовых пузырей, ползучести топлива, перераспределения твердых продуктов деления.

**Механизмы деформации топлива.** Поля напряжений, описанные выше, вызывают деформацию топлива, механизм которой зависит прежде всего от температуры и напряжения. В общем виде деформация может быть записана так:

$$\epsilon = \epsilon^E + \epsilon^P + \epsilon^V + \epsilon^T, \quad (1.15)$$

где  $\epsilon^E$  — упругая деформация;  $\epsilon^P$  — пластическая деформация;  $\epsilon^V$  — вязкая деформация;  $\epsilon^T$  — деформация, связанная с изменением плотности топлива из-за температурного расширения;  $\epsilon^E + \epsilon^P$  — деформация, происходящая при кратковременном нагружении;  $\epsilon^E$  — обратимая деформация, исчезающая при снятии нагрузки;  $\epsilon^P$  — деформация, возникающая при напряжениях, превышающих предел текучести  $\sigma^T$  материала,  $\epsilon^P \sim (\sigma^2 - \sigma_T^2)$  и является остаточной; если  $\sigma$  превышает предел прочности  $\sigma_B$ , то происходит разрушение материала. Для хрупких материалов, каковыми являются высокотемпературные топливные композиции, при низких температурах пластичность близка к нулю и  $\epsilon^P$  отсутствует. Пластичность керамического топлива проявляется начиная с температур 900–1300 °С. Поэтому большие напряжения особенно опасны до этих температур, так как приводят к образованию трещин; при высоких температурах напряжения могут релаксировать за счет пластической деформации и ползучести.

Напряжения, превышающие предел упругости в твэлах, имеют место, как правило, при кратковременных переменных режимах. В стабильном режиме процессом, приводящим к возникновению напряжений, является распухание и перестройка структуры, которые протекают сравнительно медленно и вызывают в основном деформацию путем ползучести.

При высоких температурах ( $T > 0,5T_{пл}$ ) существует два типа ползучести.

*Ползучесть путем переползания дислокаций.* При этом скорость процесса определяется потоком вакансий между дислокациями, поглощающими и испаряющими вакансии. Деформация представляется выражением

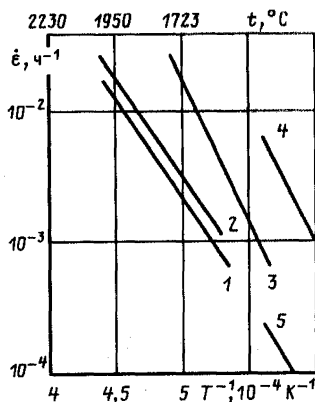
$$\epsilon^V = \beta \tau^n + k\tau, \quad (1.16)$$

где член  $\beta \tau^n$  описывает область неустановившейся ползучести, а член



Рис. 1.15. Зависимость скорости ползучести  $UO_2$ ,  $UC$ ,  $UN$  от температуры [22]:

1 —  $UO_{2,00}$ ,  $L = 18$  мкм,  $\sigma = 1,37$  МПа; 2 —  $UO_{2,00}$ ,  $L = 18$  мкм,  $\sigma = 20,6$  МПа; 3 —  $UN$ ,  $P_{N_2} = 2,7 \cdot 10^4$  Па,  $L = 140$  мкм,  $\sigma = 20,6$  МПа; 4 —  $UC$  (массовая доля  $C$  4,5%),  $\sigma = 41,2$  МПа; 5 —  $UC_{1+x}$  (4,81 — 5,18%  $C$ ),  $\sigma = 19,6$  МПа



$k\tau$  — область установившейся ползучести,

$$k = k_0 \exp(-Q/RT), \quad (1.17)$$

здесь  $k_0$  зависит от напряжения  $\sigma$ . При низких и средних значениях напряжений  $k_0 = C\sigma^n$ , где  $C$  и  $n$  — постоянные величины, значения  $n$  для чистых металлов и сплавов находятся в интервале от 3 до 5,5. Энергия активации  $Q$  не зависит от напряжения при малых его значениях ( $\sigma < < 10^{-3}G$ , где  $G$  — модуль сдвига). Для большинства материалов энергия активации ползучести совпадает с энергией активации самодиффузии.

*Диффузионная ползучесть* (ползучесть Набарро—Херинга) действует в малых объемах материала (например, в зернах размером 10 — 100 мкм), при этом вакансии диффундируют от границ, на которых действуют растягивающие напряжения, к границам, испытывающим сжимающие напряжения. Вязкое течение, возникающее при этом в поликристалле, имеет скорость

$$\dot{\epsilon}^V = 2D\sigma b^3 / (L^2 kT), \quad (1.18)$$

где  $D$  — коэффициент диффузии;  $b$  — вектор Бюргерса;  $L$  — размер зерна.

На рис. 1.15 в качестве примера представлены некоторые экспериментальные данные по ползучести  $UO_2$ ,  $UC$  и  $UN$ . Ползучесть имеет экспоненциальную температурную зависимость и, как достаточно надежно установлено для  $UO_2$  и  $UN$ , энергия активации ползучести совпадает с энергией активации самодиффузии иона урана. Для  $UC$  экспериментально наблюдаемая энергия активации колеблется в широких пределах, механизма ползучести к настоящему времени не ясен.

Для диоксида урана диффузионная ползучесть наиболее изучена, и ее скорость  $\dot{\epsilon}^V$  определяется зависимостью [22]

$$\dot{\epsilon}^V = (\sigma x / L^2) \exp[-Q/RT], \quad (1.19)$$

где  $\sigma$  — напряжение в пределах до 30 МН/м<sup>2</sup>;  $x$  — избыток кислорода в диоксиде урана сверх стехиометрического.

Таким образом, ползучесть диоксида урана увеличивается при увеличении температуры, напряжения, содержания кислорода и уменьшения размера зерна.

Для UC и UN четкой зависимости ползучести от размера зерна не обнаружено, но  $\dot{\epsilon}^V$  существенно зависит от содержания металлоида и примесей кислорода.

**Физико-химическое взаимодействие топлива с оболочкой.** Взаимодействие топлива с оболочкой может происходить непосредственно при контакте оболочки с компактным топливом или с компонентами топлива, выделяющимися в газовую или паровую фазу. Отсутствие взаимодействия, приводящего к нарушению оболочки, является первичным требованием, которое должно быть удовлетворено при выборе пары топливо—оболочка, особенно для высокотемпературных твэлов.

Взаимодействие  $UO_2$  с конструкционными материалами изучено достаточно хорошо: известны предельные температуры, при которых диоксид урана совместим длительное время с такими оболочечными материалами, как стали, алюминий, цирконий, тугоплавкие металлы. Однако некоторые отклонения в технологии изготовления таблеток  $UO_2$  (например, нарушение стехиометрии  $UO_2$  в сторону избытка кислорода или повышенное содержание влаги в таблетках), а также превышение температуры могут существенно увеличить степень взаимодействия топлива с оболочками, как с образованием урансодержащих и оксидных фаз в металлах, так и с увеличением диффузионных потоков урана и кислорода через оболочку при высоких температурах.

Топливо на основе фаз внедрения (UC, UN) является более реакционноспособным, чем  $UO_2$ , особенно при высоких температурах. Нитрид, разлагаясь в соответствии с диаграммой состояния (рис. 1.8), образует металлический уран и азот, которые могут реагировать с оболочкой с образованием интерметаллидов и фаз внедрения. Карбиды, взаимодействуя в твердом состоянии, приводят к карбидизации и охрупчиванию оболочки.

Для твэлов с большим выгоранием (твэлов первого и второго типов) предел его в большей степени определяется взаимодействием стальной оболочки с продуктами деления. Механизмы взаимодействия до настоящего времени не вполне ясны и носят достаточно разнообразный характер. Установлено, что в коррозии в основном принимают участие цезий, иод и теллур, а коррозия может быть общей, межкристаллитной и смешанной, при этом новые фазы могут образовываться как в материале оболочки, так и (в некоторых случаях) в поверхностных слоях топлива.

Для твэлов с защитными покрытиями (например, твэл четвертого типа) на основе тугоплавких соединений (пироуглерод, карбиды и нитриды металлов) взаимодействие топлива и продуктов деления с покрытиями может иметь еще более сложный и многоплановый характер.

## МИГРАЦИЯ ГАЗОВ И РАСПУХАНИЕ ДЕЛЯЩИХСЯ КОМПОЗИЦИЙ

### 2.1. Введение

Основными процессами, определяющими ресурс твэла любого типа, являются выделение ГПД из топлива под оболочку и набухание топлива от пузырей газа, образующихся в самом материале топлива. Первый процесс — газовыделение — вызывает повышение давления газа на оболочку, что необходимо учитывать в конструкции твэла. Давление и состав газа под оболочкой влияют на термическое сопротивление зазора топливо—оболочка и массоперенос топлива в объеме твэла. Вместе с тем исследование выхода ГПД из топлива является главным методом определения параметров миграции газа в поли- и монокристаллических топливных материалах в зависимости от температуры и времени. Параметры миграции необходимы для расчета выхода ГПД из зерна на его границу, из сердечника под оболочку, что дает возможность моделировать газовыделение и набухание топлива.

Установлено несколько механизмов миграции ГПД в топливе:

- 1) Миграция одиночных атомов, вызванная воздействием быстрых частиц и в первую очередь осколков деления.
- 2) Миграция одиночных атомов и малых комплексов атомов и вакансий в концентрационном поле, подчиняющаяся законам диффузии.
- 3) Перемещение ГПД в виде одиночных атомов и пузырей вместе с протяженными структурными элементами топлива: границами зерен, дислокациями.
- 4) Миграция ГПД в составе пузырей разного размера и формы в температурном поле.

Вклад перечисленных механизмов миграции в итоговое перемещение ГПД зависит от условий прежде всего температурных: диффузия и перемещение газа со структурными элементами топлива происходят при определенном уровне самодиффузии атомов топлива и становятся заметными при температуре выше  $0,5T_{пл}$ . Миграция под воздействием быстрых частиц в принципе не зависит от температуры и определяет подвижность и выход ГПД из топлива при низких температурах.

Разделить чисто концентрационную диффузию и миграцию со структурными элементами наиболее сложно, так как они проявляются в одном температурном интервале, кроме того, методически сложно создать при работе топлива условия, близкие к изотермическим. Диффузия наиболее однозначно проявляется в экспериментах с монокристаллическими и крупнозернистыми образцами, в которых отсутствует рост зерен. Миграция со структурными элементами преобладает в поликристаллическом топливе при высоких абсолютных температурах и су-

ществленных температурных градиентах, а также при наличии термокачек, которые генерируют линзообразные поры.

Второй процесс — газовое распухание топлива — приводит к увеличению диаметра сердечника, при этом вначале происходит уменьшение и ликвидация зазора топливо—оболочка, а затем увеличение диаметра оболочки, которое особенно существенно проявляется в высокотемпературных твэлах (например, третьего типа).

Газовое распухание сложным образом зависит от многих факторов: глубины выгорания, температуры топлива и оболочки, механических свойств топлива и оболочки, структуры топлива и т. д. Экспериментальное изучение распухания связано с большими трудностями: длительным облучением с поддержанием и измерением многих параметров, дистанционным исследованием облученного топлива в "горячих" камерах. В результате в настоящее время существуют, с одной стороны, разрозненные, с малой статистикой, экспериментальные наблюдения и, с другой стороны, большое число математических моделей, в основе которых лежат разнообразные представления и допущения.

Наибольшее количество материалов накоплено по процессам в диоксиде урана, это топливо и будет в основном рассматриваться в дальнейшем изложении. Немногочисленные экспериментальные работы по фазам внедрения показали, что процессы, протекающие в этих материалах, в принципе подобны процессам в диоксиде урана и подчиняются аналогичным закономерностям.

В § 2.2 и 2.3 изложены обобщение экспериментальных результатов по миграции ГПД и распуханию топлива при высоких температурах, а также основные физические представления, связанные с этим.

## 2.2. Газовое распухание топлива

**Общие положения.** В процессе облучения топлива плотность его изменяется в результате протекания процессов спекания и распухания, в основе которых лежит рождение и миграция вакансий. В первом случае миграция направлена из пор к поверхности сердечника, во втором вакансии мигрируют в поры.

Спекание топлива может активироваться термическим и радиационным воздействиями. Термически активируемое спекание достаточно хорошо изучено и является основой технологического метода — порошковой металлургии. На последней стадии процесса при достаточной плотности топлива ( $\rho \geq 90\%$  теоретической плотности) спекание протекает путем объемной диффузии вакансий от поры к границе зерен, при этом движущей силой миграции является разность концентраций вакансий вблизи поверхностей с различным радиусом кривизны (пора и граница зерна). Спекание мелких пор ( $d < 0,5$  мкм) происходит существенно быстрее, чем крупных, этим объясняется наличие в хорошо спеченном образце в основном крупных пор спекания ( $d = 1 \div 2$  мкм).

Радиационное уплотнение связано с воздействием на поры спекания осколков деления, вызывающих перевод вакансий поры в матрицу топлива. Мелкая пора ( $d < 100 \text{ \AA}$ ) может быть полностью "распылена" одним осколком. В крупных порах происходит частичный перевод вакансий в матрицу; предположительно, при прохождении осколка деления через пору некоторое количество  $\text{UO}_2$  распыляется и переносится на более холодные поверхности поры, "запечатывая" при этом часть вакансий в матрицу топлива; то же самое может происходить в случае прохождения осколка вблизи поры.

Большая часть вакансий после прохождения осколка вновь коагулирует с образованием мелких пор, однако в среднем облучение вызывает постоянное превышение концентрации вакансий вблизи пор по сравнению с термически равновесной, что ускоряет миграцию вакансий к границам и, следовательно, спекание топлива.

В соответствии с экспериментальными данными и модельными представлениями механизм, контролирующий уплотнение, зависит от многих факторов: температуры топлива, скорости деления, размера зерен топлива. При этом поры разных диаметров ведут себя по-разному. На рис. 2.1 представлены расчетные данные термического и реакторного уплотнения топлива от времени спекания (глубины выгорания) для двух размеров пор. Как видно, соотношения вкладов термической и радиационной составляющих существенно различаются для пор с размерами 0,45 и 1 мкм. Вообще в соответствии с [3] можно считать, что при температурах облучения выше  $1300^\circ \text{C}$  для  $F_d \leq 10^{13}$  дел/( $\text{см}^3 \times \text{с}$ ) определяющим является механизм термического спекания.

Газовое распухание топлива приводит к деформации твэла, которая проявляется прежде всего в относительном увеличении его диаметра  $\Delta D/D_0$ . Увеличение длины, как правило, существенно меньше изменения диаметра. Распухание самого топлива выражается в уменьшении его плотности  $\Delta \rho/\rho_0$ . Прямая связь  $\Delta D/D_0$  с  $\Delta \rho/\rho_0$  при исследовании облученных твэлов наблюдается не всегда: так, в топливе, работающем при высокой температуре, возможна периодическая перестройка структуры, которая приводит к уменьшению распухания топлива, накопленного к этому моменту, не изменяя при этом накопленную деформацию оболочки.

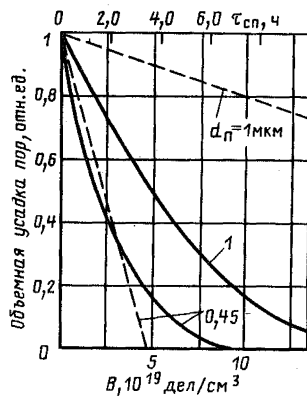


Рис. 2.1. Расчетное определение объемной усадки пор диаметром 0,45 и 1 мкм в результате радиационного (штриховые линии) и термического (сплошные линии) спекания [23]

Первопричиной газового распухания является образование газонаполненных пор или пузырей и связанное с этим увеличение объема топлива, при этом распухающее топливо оказывает давление на оболочку, что приводит к деформации последней. Объем пузыря состоит из объема атомов газа и свободного пространства, которое можно рассматривать как некоторое количество вакансий объемом  $\Omega_v$ . Отношение числа атомов газа  $m$  к числу вакансий  $n$  определяет давление газа в пузыре.

Вакансии в материале возникают термическим путем или под воздействием потоков быстрых частиц. Равновесная концентрация термических вакансий зависит от температуры:

$$C_{v,t} = A \exp(-E_v/RT), \quad (2.1)$$

где  $E_v$  — энергия образования вакансий. Максимальная доля вакансий, наблюдаемых вблизи точки плавления, составляет примерно  $10^{-4}\%$ . Число вакансий, рождаемых в процессе облучения, зависит от типа и энергии быстрых частиц и характера облучаемого материала. Типичные скорости смещения атомов конструкционных материалов (т. е. скорости образования вакансий) при облучении нейтронами в реакторах составляют  $10^6 - 10^8$  смещ/(ат · с)\*; скорости смещения атомов в топливе при облучении осколками деления существенно выше. Часть рождаемых вакансий быстро аннигилирует, практически не изменяя дефектность материала. Другая часть вакансий мигрирует на стоки, образуя динамически равновесную концентрацию  $C_v$ . Вакансии, попадающие в пузыри, составляют прямой вклад в распухание материала.

Атомы нейтральных газов He, Xe, Kr, образующиеся в материалах в результате протекания ядерных реакций, имеют ничтожно малую растворимость, например растворимость He в Ta при  $2000^\circ\text{C}$  и давлении 0,1 МПа не превышает  $3,7 \cdot 10^{-15}\%$ /Па [24], а растворимость He в  $\text{UO}_2$  при температуре  $1200^\circ\text{C}$  и давлении 5–10 МПа составляет около  $1,5 \times 10^{-10}\%$ /Па [25], что на много порядков меньше растворимости химически активных газов N, O, H. В силу этого атомам нейтрального газа энергетически выгодно образовывать с вакансиями устойчивые комплексы, что приводит к стабилизации вакансий и процессу конденсации их, т. е. к распуханию материала. Таким образом, по определению С. Т. Конобеевского, "газовое распухание" есть не что иное, как результат замедления аннигиляции рождающихся вакансий".

В общем случае соотношение  $m/n$  зависит от числа газовых атомов и вакансий, образующихся при облучении и подвижности их в решетке материала. При радиационном облучении материалов реализуются лю-

\* Смещений на один атом в секунду.

бые варианты распухания, от чисто вакансионного ( $m/n \approx 0$ ) до газового ( $m/n > 0$ ), достигающего в некоторых случаях  $m/n > 1$ .

Чисто вакансионное распухание наблюдается в конструкционных материалах при облучении большими флюенсами быстрых нейтронов в ядерных реакторах,  $K = 10^6 - 10^8$  смещ/(ат · с), или ионами в ускорителях,  $K = 10^2 - 10^4$  смещ/(ат · с), в условиях пересыщения вакансиями и их достаточной подвижности. Например, для хромоникелевой стали (типа Ст.316) распухание наблюдается при дозах облучения выше  $10^{22}$  нейтр/см<sup>2</sup> ( $E > 0,1$  МэВ), что эквивалентно примерно 5 смещ/ат, в интервале температур 350–700 °С (0,4–0,6 $T_{пл}$ ); при более высокой температуре пересыщение вакансий падает и вакансионные поры не образуются. Максимум зависимости распухания от температуры, изменение скорости распухания от дозы облучения зависят от способа создания повреждений в стали (в реакторе или ускорителе), состава и технологии изготовления стали, а также от концентрации гелия, образующегося по  $\alpha$ -реакции при облучении в реакторе. Скорость распухания стали в максимуме зависимости распухания от температуры и на установившейся стадии может достигать примерно 1% на 1 смещ/ат [26, 27].

Пример "чисто газового" распухания в его "крайнем" выражении наблюдается при облучении конструкционных материалов интенсивными потоками ионизированного газа ( $J > 10^{17}$  ион/см<sup>2</sup>), что приводит к образованию концентрации газа в узком поверхностном слое, достигающей  $10^{21}$  ат/см<sup>3</sup>, при этом в приповерхностном слое образуются пузыри ("блистеры"), в которых в условиях избытка газовых атомов, при некотором недостатке вакансий, развивается высокое давление, достигающее предела текучести окружающей матрицы, что приводит к отрыву крышек блистеров и образованию пористой поверхности. Газонаполненные поры при отжиге устойчивы до более высоких температур, чем вакансионные ( $T \approx 0,7T_{пл}$ ) [28].

При работе топлива точечные дефекты образуются в основном в зонах прохождения осколков деления. Если принять скорость деления  $F_d = 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с), число смещений в объеме трека  $10^4 \div 10^5$  смещ/трек и число атомов в 1 см<sup>3</sup> диоксида урана  $7,5 \cdot 10^{22}$  ат/см<sup>3</sup>, то  $K \approx 10^5$  смещ/(ат · с), а число смещений за ресурс  $10^4$  ч составит около 100 смещ/ат. Полученные значения близки к результатам скоростей и величин смещений, характерным для вакансионного распухания. Количество нейтрального газа, образующегося в топливе при тех же условиях, составит около  $10^{20}$  ат/см<sup>3</sup>, или около  $10^1 - 10^2\%$ , что близко к условиям блистерообразования в материалах. Таким образом, в топливе могут существовать условия для образования газовых пор с разным соотношением  $m/n$ , однако экспериментально давление газа в порах топлива  $p_n$  не определяется, и в литературе, как правило, рассматривается давление в пузыре, уравновешенное внешним давлением матрицы, которое складывается в общем случае из "лашасовского" давления, образуемого поверхностным натяжением

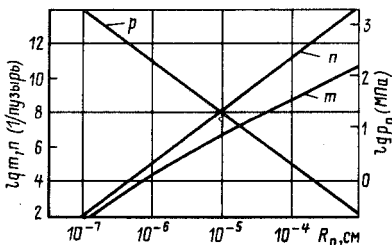


Рис. 2.2. Расчетная зависимость числа вакансий  $n$ , числа атомов газа  $m$  (для  $T = 1900$  К) и давления  $p_{\Pi}$  в пузырьках от их радиуса в  $UO_2$

стенки пузыря  $\gamma$ , и гидростатического давления  $p_T$ , образуемого сопротивлением оболочки и окружающей топливной матрицы расширению пузыря:

$$p_{\Pi} = p_T + 2\gamma/R_{\Pi}. \quad (2.2)$$

При малых размерах пузырей ( $R_{\Pi} \leq 1$  мкм) определяющим является поверхностное натяжение, которое удерживает давление газа в пузырьках до нескольких сот мегапаскалей. На рис. 2.2 представлена зависимость для малых равновесных пузырей в  $UO_2$  числа атомов газа  $m$ , вакансий  $n$  и давления  $p_{\Pi}$  от размера пузыря. Значения рассчитаны из соотношений:

$$p_{\Pi}(V_{\Pi} - mb) = mkT; \quad p_{\Pi} = 2\gamma/R_{\Pi}; \quad n = V_{\Pi}/\Omega_{\text{в}}, \quad (2.3)$$

где  $b = 8,5 \cdot 10^{23}$  см<sup>3</sup>/ат (для Хе);  $\Omega_{\text{в}} = 4,09 \cdot 10^{23}$  см<sup>3</sup> — объем вакансии для  $UO_2$ ;  $\gamma = 10^4$  Дж/см<sup>2</sup> [13]. Для больших пузырей ( $R_{\Pi} > 1 \div 10$  мкм) основную роль играет гидростатическое давление  $p_T$ , которое определяется прочностными свойствами топлива и оболочки, а при высокой температуре — в основном их ползучестью;  $p_T$  может быть рассчитано из модели напряженно-деформированного состояния всего твэла. Для низкотемпературных твэлов (типы 1, 2 табл. 1.2)  $p_T$  может составлять несколько единиц мегапаскалей, для высокотемпературных твэлов значение  $p_T$  на порядок меньше.

Таким образом, принятое допущение о равновесности газовых пузырей предполагает, что любое отклонение давления в пузыре от равновесного быстро компенсируется притоком или испарением вакансий, т. е. поток вакансий (концентрация и подвижность их) не контролирует скорость изменения размера пузырей, и кинетика распухания зависит от концентрации и миграции газовых атомов. Так, если  $p_{\Pi} > p_T + 2\gamma/R_{\Pi}$ , то вокруг пузыря в матрице возникает поле напряжений; при восстановлении равновесия в пузыре произойти релаксация поля напряжений путем деформации окружающей матрицы. Так как рост давления в пузыре зависит от накопления газа и является процессом сравнительно медленным, то деформация окружающей матрицы происходит путем диффузионного потока вакансий в пузыре, что в общем проявляется как диффузионная ползучесть топлива.



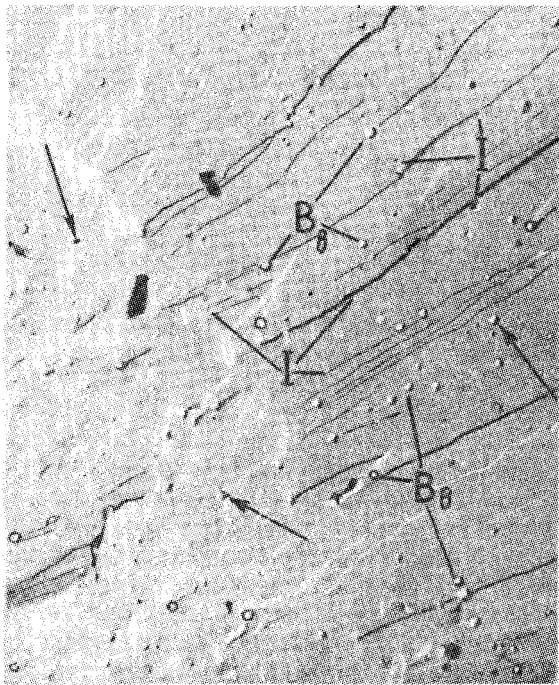


Рис. 2.3. Внутризеренные пузыри в облученном  $UO_2$  [ $B = 3 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>,  $t_{обл} = 1000$  °С, отжиг после облучения при  $t_{отж} = 1500$  °С,  $\tau_{отж} = 72$  ч;  $B_B$  – внутризеренные пузыри;  $I$  – включения твердых продуктов деления (REM)] [29]

Если  $p_n < p_T + 2\gamma/R_n$ , то вакансии будут "испаряться" из пузырей, при этом будет происходить уменьшение их размеров, т. е. спекание топлива.

Металлографическим и электронно-микроскопическим анализом установлено присутствие в облученном диоксиде урана двух типов пузырей:

1). Внутри зерен содержится большое число мелких "сферических" пузырей (например, диаметром в интервале 10–30 Å в количестве около  $10^{17}$  см<sup>-3</sup>). Эти пузыри получили в литературе наименование внутризеренных (ВЗП), они представлены на фотографии, полученной с помощью электронного микроскопа (рис. 2.3). Вклад ВЗП в распухание топлива невелик из-за высокой концентрации газа в них и несколько превышает твердое распухание.

2). На границах зерен располагаются крупные, увеличивающиеся с выгоранием межзеренные пузыри (МЗП), достигающие размеров, сравнимых с размером зерна (несколько микрометров) (рис. 2.4).

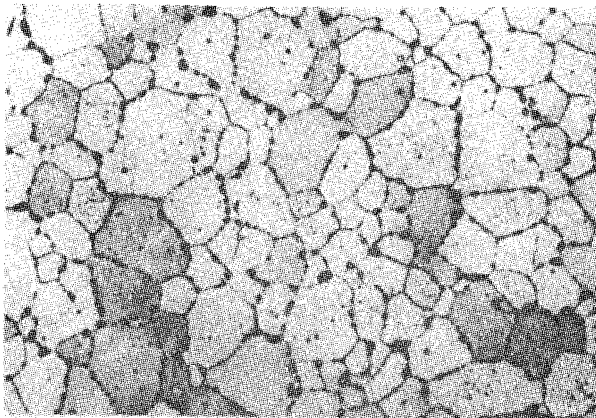


Рис. 2.4. Межзеренные пузыри в облученном  $\text{UO}_2$  ( $B = 1 \cdot 10^{19}$  дел/см<sup>3</sup> при  $t_{\text{обл}} \approx 1500$  °C)

Давление газа в МЗП низкое, МЗП вносят основной вклад в распухание топлива.

Процессы зарождения и развития ВЗП и МЗП носят различный характер и поэтому их целесообразно рассмотреть отдельно.

**Экспериментальное исследование ВЗП.** Единственным методом исследования ВЗП в настоящее время является трансмиссионная электронная микроскопия тонких фольг, вырезанных из плотных образцов  $\text{UO}_2$ . Разрешающая способность достигает 5 Å. Погрешность определения диаметра пузыря ( $d_{\text{пуз}}$ ) во многом зависит от толщины фольги: при наименьшей толщине фольги, равной 350 Å, погрешность

Таблица 2.1. Характеристика ВЗП в образцах  $\text{UO}_2$  после низкотемпературного

Облучение			Отжиг		Характеристика ВЗП	
Температура, °C	Выгорание, $10^{19}$ дел/см <sup>3</sup>	Температура, °C	Время, ч	Диаметр, Å	Концентрация, см <sup>-3</sup>	
100	2,2	1100	1	25–50	$5 \cdot 10^{15}$	
100	2,2	1500	1	До 100	–	
100	2,2	1500–1800	1	До 100	–	
100	2,2	1800	1	–		Уменьшается
100	2,2	2000	1	–		ВЗП отсутствуют
100	16	1500	1	100–300	$3 \cdot 10^{15}$	
900	20	1500	5	40–100	$2,4 \cdot 10^{16}$	
Менее 1000	28	1500	72	500	–	
700	15–20	1500	5	50–70	–	

определения  $d_{\text{пуз}} = 10$  и  $20 \text{ \AA}$  составляет 60 и 10% соответственно [30]. Большинство работ проведено на более толстых фольгах (около  $1500 \text{ \AA}$ ), в связи с чем результаты отличаются значительным разбросом.

Облучение при низких температурах ( $T < 600 \text{ }^\circ\text{C}$ ) до не очень больших выгораний ( $3 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>) не вызывает образования видимых пузырей. Послерадационный отжиг таких образцов приводит к выделению ВЗП, причем более крупные пузыри располагаются на дислокациях, вблизи пор спекания и границ зерен или связаны с твердыми включениями. В табл. 2.1 представлены результаты некоторых измерений пузырей в образцах, отожженных после облучения. Как видно, размеры пузырей увеличиваются при увеличении температуры и времени отжига. Отжиг при температуре  $1500 \text{ }^\circ\text{C}$  в течение 5 ч приводит к полному выделению газа в видимые пузыри.

Наблюдается также и обратный процесс перехода газа из пузырей в решетку, так называемое перерастворение, которое происходит в основном под облучением и в некоторых случаях термическим путем.

*Влияние факторов облучения на ВЗП.* Ниже представлены основные экспериментальные наблюдения ВЗП непосредственно после облучения в зависимости от температуры, скорости деления и времени облучения (выгорания). Несмотря на большой разброс результатов (особенно результатов, полученных разными авторами), можно установить определенные закономерности.

1) Обнаружено, что видимые пузыри, наблюдаемые после облучения, образуются только после некоторого инкубационного периода выгорания. Так, при температуре  $1000 \text{ }^\circ\text{C}$  этот период длится до выгорания  $3 \cdot 10^{19}$  дел/см<sup>3</sup>, что соответствует накоплению газа до кон-

**облучения и последующего отжига**

Диаметр ВЗП на дислокациях, $\text{\AA}$	Источник
До 75	[31]
100–300	[31]
100–300	[31]
–	[31]
ВЗП отсутствуют	[31]
До 2000	[31]
300	[32]
–	[29]
Отдельные до 600	[33]

центрации около  $3 \cdot 10^{-2}\%$ . В конструкционных металлах появление пузырей с нейтральным газом связано с концентрацией атомов газа более  $5 \cdot 10^{-3}\%$ , что близко к указанному выше значению.

2) С увеличением температуры облучения концентрация пузырей уменьшается, а размеры их увеличиваются. Однако температурная зависимость является слабой: диаметр пузырей и концентрация их в интервале температур  $800 - 1800 \text{ }^\circ\text{C}$  меняются лишь в два раза (рис. 2.5). До температуры около  $1700 \text{ }^\circ\text{C}$  распределение ВЗП

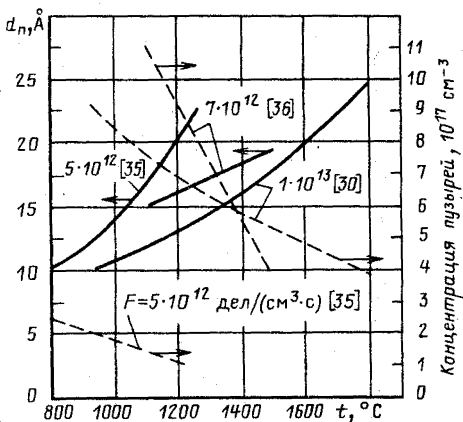


Рис. 2.5. Зависимость среднего диаметра и концентрации ВЗП в  $\text{UO}_2$  от температуры облучения при различных скоростях выгорания

однородно, при больших температурах относительная плотность ВЗП повышается вблизи границ зерен и становится неравномерной внутри зерен: имеются области, лишенные пузырей, и области с высокой плотностью ВЗП, прилегающие непосредственно к большим пузырям, которые образуются на дислокациях и границах субзерен. Тенденция образования пузырей на дислокациях растет с температурой. После высокотемпературного облучения ( $t_{\text{обл}} \approx 1800 \text{ }^\circ\text{C}$ ) и последующего отжига при  $1500 \text{ }^\circ\text{C}$  Бейкер (Великобритания) не обнаружил выделения ВЗП внутри зерен, что свидетельствует об отсутствии в этих областях заметной концентрации газа. При температуре выше  $2000 \text{ }^\circ\text{C}$  ВЗП вообще не образуются.

3) С увеличением скорости выгорания количество ВЗП увеличивается, а их размер уменьшается (табл. 2.2). При больших скоростях выгорания начало появления заметных пузырей смещается в область больших температур, кроме того увеличивается неравномерность выделения пузырей — они образуют отдельные участки мелких пузырей, прилегающие к границам зерен, крупным порам и газовым пузырям.

4) В первом приближении не замечено изменение (или замечено очень слабое увеличение) концентрации и размеров ВЗП во времени при увеличении дозы облучения. В качестве иллюстрации в табл. 2.3 представлены результаты по измерению ВЗП в зависимости от выгорания (сравнение имеет смысл проводить лишь в рамках одной работы).

5) Большинство наблюдений показывает, что в облученных образцах ВЗП, не связанные с дислокациями и включениями, располагаются в виде коротких прямолинейных цепочек (рис. 2.6), особенно хорошо видимых при малых скоростях деления, что свидетельствует о преимущественном зарождении ВЗП на треках осколков деления. Между цепочками пузырьков видны значительные области (шириной до  $2 \text{ мкм}$ ), свободные от видимых ВЗП. При увеличении температуры расположение ВЗП на треках становится более четким, а сами цепочки

Таблица 2.2. Зависимость размера и количества ВЗП в  $UO_2$  от скорости деления в интервале температур 900–1100 °С

Облучение		Характеристика ВЗП			Источник
Температура, °С	Скорость деления, $10^{12}$ дел/(см <sup>3</sup> ·с)	Диаметр, Å	Концентрация, $10^{17}$ см <sup>-3</sup>		
1000	4,2	15	2,5	[35]	
950	5,7	19	4,9	[36]	
1100	6,7	16	8,7	[36]	
1100	7,6	14	11,0	[36]	
900	29	12	16,0	[36]	
1000	11,0	10	8,5	[30]	
1000	12,5	ВЗП едва различимы			
1050	26,0	Располагаются отдельными участками вблизи границ зерен			[32]

Таблица 2.3. Характеристика ВЗП в зависимости от времени облучения (выгорания)

Облучение			Характеристика ВЗП				Источник
Температура, °С	Скорость выгорания, $10^{12}$ дел/(см <sup>3</sup> ·с)	Выгорание, $10^{20}$ дел/см <sup>3</sup>	Время, мес	Разрешающая способность метода, Å	Диаметр, Å	Концентрация, см <sup>-3</sup>	
1100	7,6	1,8	17,5	—	14	$8,7 \cdot 10^{17}$	[36]
1100	6,7	3,3	33,0	Более 10	16	$1,1 \cdot 10^{18}$	[36]
1500	7,6	1,8	17,5	—	19	$3,8 \cdot 10^{17}$	[36]
1500	6,7	3,3	33,0	—	20	$4,6 \cdot 10^{17}$	[36]
Не указана*	80	2,7	1,0	—	250	$10^{14} - 10^{15}$	[37]
То же	80	4,2	1,5	Более 100	200	$10^{15}$	[37]
"	73	21,0	9,0	—	200	$10^{15}$	[37]

\* Авторы не обнаружили зависимости распределения пузырей от температуры.

длиннее. Замечено, что число ВЗП, видимых в цепочке при данном увеличении, близко к постоянному значению в пределах одного режима облучения: при низких температурах (до 1250 °С) наблюдалось около 5–10 пузырей на один трек [34], при увеличении температуры это число росло, и для  $t = 1800$  °С наблюдались цепочки с числом ВЗП,

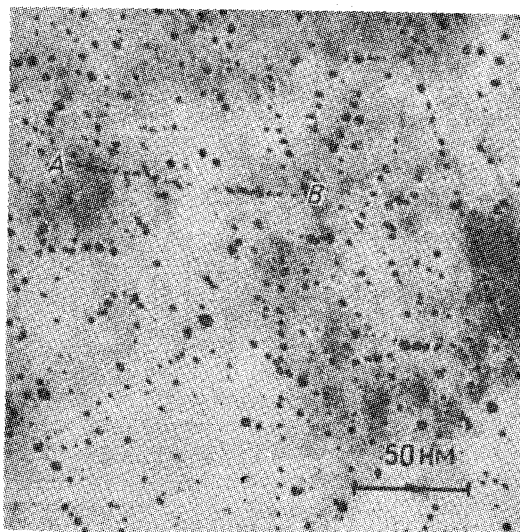


Рис. 2.6. Внутризеренные пузыри в облученном  $\text{UO}_2$  [ $B = 2 \cdot 10^{20}$  дел/ $\text{см}^3$ ,  $t_{\text{обл}} = 1650$  °C,  $F_{\text{д}} = 10^{12}$  дел/( $\text{см}^3 \cdot \text{с}$ ), просвечивающая электронная микроскопия (ТЕМ)] [30]

превышающим 100 [30]. При температуре 1500 °C около 10% ВЗП можно было приписать определенным трекам, при более высоких температурах практически все ВЗП могли быть квалифицированы как лежащие на определенных треках. При увеличении скорости деления цепочки пузырей приобретают вид пересекающихся и ломаных прямых, а отдельные пузыри вдоль треков не всегда можно разделить, и они выглядят как цепочки внутрисвязанных пузырей.

б) Кривая распределения ВЗП по их размерам снизу ограничивается разрешающей способностью метода наблюдения. На рис. 2.7 представлено распределение ВЗП, исследованное с разрешающей способностью около 10 Å; видно, что основная доля пузырей лежит в интервале 10–20 Å. На рис. 2.8 представлены средние значения числа и диаметров пузырей по данным трех авторов, использовавших методы наблюдения с разной разрешающей способностью (10, 100 и 500 Å). Из рисунка видно, что концентрация ВЗП достаточно резко падает при увеличении диаметра пузыря, однако до  $10^3$  Å не наблюдается какой-либо четко выраженной границы распределения.

*Перерастворение атомов газа.* Переход атомов нейтрального газа из газообразного состояния в решетку твердого тела предположительно может происходить двумя способами: термическим и радиацион-

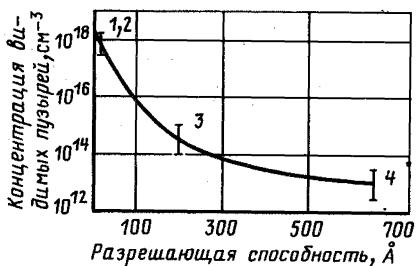
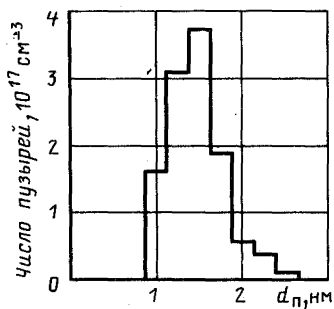


Рис. 2.7. Распределение внутризеренных пузырей по размерам [ $t_{\text{обл}} = 1770$  К,  $F_{\text{д}} = 7,6 \cdot 10^{12}$  дел/(см<sup>3</sup> · с)] [36]

Рис. 2.8. Зависимость концентрации видимых пузырей от разрешающей способности метода:

1 -  $F_{\text{д}} = 1 \cdot 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с) [30]; 2 -  $F_{\text{д}} = 7,6 \cdot 10^{12}$  дел/(см<sup>3</sup> · с) [36];  
3 -  $F_{\text{д}} = 6,7 \cdot 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с) [37]; 4 -  $F_{\text{д}} = 7,8 \cdot 10^{12}$  дел/(см<sup>3</sup> · с) [38]

ным. Переход термическим путем в обычных условиях весьма затруднен в связи с тем, что, во-первых, мала вероятность адсорбции атома нейтрального газа на поверхности твердого тела, которая в отсутствие термической ионизации нейтрального газа определяется в основном взаимодействием Ван-дер-Ваальса, и, во-вторых, ничтожно мала растворимость газа в решетке. Однако в условиях высоких температур и давлений экспериментально наблюдается термический переход нейтрального газа в решетку твердого тела. Так, внедрение He в золото обнаружено при сверхвысоких давлениях, равных  $(3-10) \cdot 10^2$  МПа, и высоких температурах: 600–800 °С (0,5–0,7 $t_{\text{пл}}$ ). При закалке образцов гелий образовывал пузыри диаметром 25–500 Å, концентрация которых составляла около  $10^{15}$  см<sup>-3</sup> [39].

В диоксиде урана при термическом отжиге образца, предварительно облученного при низкой температуре, уменьшение концентрации и полное исчезновение ВЗП наблюдаются при температурах 1800 и 2000 °С соответственно, что составляет 0,6–0,7 $t_{\text{пл}}$ . Если учесть, что давление газа в малых пузырьках составляет несколько десятков и даже сотен мегапаскалей, то можно предположить, что в этом случае происходит термическое перерастворение ГПД из пузырей в решетку. Однако на экспериментально наблюдаемый выход газа из пузырей при отжиге могут также влиять побочные процессы, такие, как миграция пузырей в температурных полях или "выметание" пузырей при движении границ зерен в поликристаллических образцах.

Эффект перерастворения атомов газа из пузырей в решетку в результате воздействия облучения многие исследователи наблюдали экспериментально.

Например, Росс [29] путем облучения и последующего отжига при температуре 1500 °С сформировал в образце UO<sub>2</sub> внутризеренные газовые пузыри размером до 1000 Å и межзеренные пузыри размером до 2 мкм. Образцы были повторно облучены при температуре не выше 200 °С до малого выгорания (около 0,08%). Исследование с помощью электронного микроскопа показало, что в результате облучения исчезли пузыри диаметром до 0,5 мкм, пузыри на границах зерен с большими размерами сохранились, однако материал вокруг них оказался разрушенным, образовались "ободки", как предполагается, в результате вбивания атомов газа в решетку вблизи газового пузыря.

В других экспериментах при высоких температурах вокруг больших пузырей наблюдалось образование "ободков" из мелких пузырей. Образование "ободков" шириной до 900 Å наблюдалось также при изменении режима облучения в сторону увеличения скорости деления.

Количественно перерастворение было измерено путем экспериментов, аналогичных экспериментам Росса. В результате облучения и последующего отжига были образованы пузыри диаметром около 50–70 Å (при этом практически весь газ выделялся в пузыри). На основании нескольких низкотемпературных облучений различными дозами был вычислен параметр перерастворения  $\eta$ , показывающий вероятность перехода атома газа из пузыря в раствор:

$$\eta = - \frac{1}{n} \frac{dn}{dt}, \quad (2.4)$$

где  $n$  — общее число атомов газа в пузырях;  $dn$  — число атомов газа, переходящих в раствор за время  $dt$ .

Значение  $\eta$  для пузырей диаметром 50–70 Å и скорости деления  $F_d \approx 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с) оказалось равным  $2,6 \cdot 10^{-5} - 1,2 \cdot 10^{-4}$  с<sup>-1</sup> для  $t = 200$  °С [33];  $1,8 \cdot 10^{-4} - 3,6 \cdot 10^{-4}$  с<sup>-1</sup> для  $t = 1200$  °С [40].

На основании этих результатов авторы [33, 40] предположили, что  $\eta$  не зависит от температуры, а определяется только скоростью деления: в расчетах, в первом приближении можно принимать прямую пропорциональность значения  $\eta$  скорости деления.

**Зарождение и рост внутризеренных пузырей.** Исторически первые теории Гринвуда [41] и Уофема [42] предполагали гомогенное зарождение ВЗП в пересыщенном твердом растворе вследствие диффузии атомов газа. Считалось, что двухатомный зародыш является термически стабильным. Пока вероятность встречи диффундирующего одиночного атома с другим одиночным атомом превышает вероятность захвата его существующим зародышем, происходит быстрый рост числа зародышей. В последующее время генерируемый газ в основном поглощается существующими пузырями. Ограничение числа зародышей в теории Уофема предусмотрено учетом вероятности разрушения двух-



атомных зародышей осколками деления и процесса слияния пузырей при их хаотическом движении.

Теория гомогенного зарождения предполагает рост числа пузырей и их диаметра с увеличением глубины выгорания, однако этот рост невелик (например, увеличение глубины выгорания на порядок увеличивает число пузырей в 4 раза).

Изложенные выше результаты наблюдений с помощью электронного микроскопа свидетельствуют о реальности процесса разрушения малого пузыря одним осколком деления и гетерогенного зарождения ВЗП на треках осколков в процессе облучения. Ниже рассмотрен в основном этот процесс зарождения пузырей.

Опыт показывает, что средний размер ВЗП меньше диаметра трека, и естественно предположить, что пузыри могут быть полностью разрушены при попадании в зону торможения осколка деления. Время жизни ВЗП в этом случае определяется частотой наложения треков осколков деления в месте расположения пузыря. Если принять объем трека равным  $V_{\text{тр}} = \pi r_{\text{тр}}^2 L$ , то среднее время жизни ВЗП равно

$$\tau = (2V_{\text{тр}}F_{\text{д}})^{-1}. \quad (2.5)$$

В [34] используется также представление, что ВЗП разрушается, если через него проходит ось трека, тогда

$$\tau = (2\pi R_{\text{п}}^2 L F_{\text{д}})^{-1}, \quad (2.6)$$

где  $R_{\text{п}}$  — радиус пузыря.

Интересно сравнить время жизни пузыря, полученное по (2.5) и (2.6); сравнение проведем для следующих значений величин:  $F_{\text{д}} = 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с),  $L = 6 \cdot 10^{-4}$  см,  $r_{\text{тр}} = 50$  Å,  $R_{\text{п}} = 10$  Å; тогда по (2.5) получим  $\tau = 100$  с, по (2.6)  $\tau = 2500$  с. Если для определения  $\tau$  используем экспериментальную величину — коэффициент перерастворения  $\eta$  [см. § 2.2 и (2.4)], то получим  $\tau = 1/\eta = (2,7 \div 5,5) \cdot 10^3$  с.

Значение  $\eta$  может быть занижено, так как оно определено для пузырей средним диаметром 50–70 Å и, кроме того, в распределении пузырей должны были существовать пузыри большего размера, механизм перерастворения которых другой. Поэтому время жизни для пузырей диаметром 20 Å должно быть меньше и, возможно, выражается (2.5).

Воздействие осколка можно рассматривать условно состоящим из двух фаз: разрушения и отжига. Фаза разрушения приводит к уничтожению в зоне прохождения осколка предыстории кристаллической решетки. Размер зоны разрушения (диаметр трека) зависит в основном от свойства материала и не должен зависеть от скорости деления. Температура, по-видимому, может влиять на размер зоны разрушения через физические свойства материала (электропроводность, подвижность вакансий), например  $\text{UO}_2$  при низких температурах является

электроизолятором ( $\rho \approx 10^4$  Ом · м), а при высоких температурах — полупроводником ( $\rho \approx 10^{-2}$  Ом · м при  $t = 1700$  °С) [43].

В объеме трека в фазе разрушения создается определенное число вакансий и внедренных атомов, которое составляет по оценкам  $10^4 - 10^5$ , а также присутствуют атомы продуктов деления и в том числе Хе и Кг. Количество атомов газа в объеме трека равно количеству атомов рожденного к этому моменту газа за вычетом атомов газа, вышедших из зерен. В соответствии с результатами наблюдений при помощи электронного микроскопа это количество достигает определенного значения в процессе выгорания, после чего остается постоянным при данном режиме облучения, т. е. наступает квазистационарный режим, при котором количество газа, стекающего на растущие граничные или дислокационные пузыри, сравнимо с количеством рождающегося газа.

Вторая стадия — отжиг зоны трека, в соответствии с § 1.2 происходит под воздействием температуры окружающей среды (топлива). Длительность стадии отжига при температурах около  $0,5t_{пл}$  может быть сравнима с интервалом времени между воздействиями осколков деления. Механизм отжига качественно можно представить следующим образом.

Междоузельные атомы перемещаются в концентрационном поле от периферии трека к центру, вызывая аннигиляцию вакансий, которыми богата центральная часть трека. При этом в центр трека выталкиваются примесные атомы, в том числе крупные атомы Хе, Кг, и часть этих атомов, попадая в вакансионные кластеры, стабилизирует их, препятствуя дальнейшей аннигиляции вакансий (спеканию). Таким образом, по оси трека образуется некоторое количество вакансионных пустот, стабилизированных атомами газа — газовых пузырей. Скорость и полнота отжига зоны трека должны зависеть при постоянной зоне разрушения от температуры: чем выше температура, тем большая часть зоны трека отжигается, тем больше атомов газа должно собираться на оси трека. Это подтверждается наблюдениями с помощью электронного микроскопа (см. § 2.2, п. 5). Исходя из количества пузырей, которые идентифицируются как лежащие на треках, можно предположить, что объем зоны отжига трека при температуре  $1250$  °С составляет примерно 10% максимальной зоны разрушения ( $d_{трека} = 100$  Å), а при температуре  $1800$  °С в процессе отжига реализуется практически весь объем трека. Возможно, при низких температурах (около  $1300$  °С) большая часть газовых пузырей (до 90%) зарождается гомогенно в результате высокого пересыщения топлива газом. При повышении температуры эффективность треков как зон гетерогенного зарождения пузырей повышается, т. е. увеличиваются количество и размер пузырей, лежащих на треках.

Естественно, не весь газ при отжиге трека собирается в видимые пузыри ( $R_n > 5$  Å), часть его остается в растворе в виде комплексов (вероятнее всего, с вакансиями) и малых кластеров. Газ, остающийся

ся в растворе, имеет значительную подвижность в решетке по сравнению с пузырями и диффундирует на стоки, которыми являются прежде всего структурные дефекты — границы зерен, дислокации, примесные включения, пузыри. В связи с этим увеличение размеров ВЗП, возникших на оси трека, может происходить не только за счет атомов газа, поступающих из объема трека, но также за счет диффузии из окружающей матрицы. Разделить эти два процесса невозможно, можно только предположить, что при высокой температуре часть времени ВЗП растет вследствие диффузии газа из окружающей матрицы.

ВЗП наблюдались после облучения при низких температурах 750–1000 °С [35, 36]; так как диффузия в этих случаях является радиационно стимулируемой, то можно предположить, что ВЗП существует во всем интервале температур до 1800 °С. Это подтверждается также теоретическим расчетом [44].

Видимые пузыри образуются по прошествии некоторого времени выгорания, и этот инкубационный период должен зависеть от температуры: чем она выше, тем раньше образуются видимые пузыри. Естественно, что при низких температурах инкубационный период не должен зависеть от температуры.

Представляет интерес рассмотрение влияния скорости деления на образование газовых пузырей. На рис. 2.9 представлена зависимость концентрации внутриверных пузырей  $N$ , их диаметра  $d_{\text{п}}$  от скорости деления  $F_{\text{д}}$  по данным [36] (см. табл. 2.2), здесь же представлены результаты расчета общего количества газа в ВЗП, полученного с использованием (2.3). Облучение происходило при низкой температуре (около 1000 °С). Как видно,  $N$  увеличивается, а  $d_{\text{п}}$  уменьшается при увеличении  $F_{\text{д}}$ , при этом количество газа в ВЗП остается практически постоянным. Можно дать следующее объяснение этому: при низких температурах увеличение  $F_{\text{д}}$  приводит к увеличению концентрации дефектов в топливе, что в свою очередь увеличивает число гомогенно образующихся зародышей ВЗП. При более высоких температурах также наблюдается размельчение ВЗП с увеличением  $F_{\text{д}}$ , однако сравнимые количественные данные по  $N$ ,  $d_{\text{п}}$  и общему количеству газа в ВЗП отсутствуют.

Ниже на основе результатов экспериментальных работ с использованием электронного микроскопа проведена оценка наиболее вероятных значений содержания газа в ВЗП и растворе (при условии, что давление в ВЗП является равновесным). Количество газа рассчитывалось по экспериментально определенным значениям среднего размера пузырей и их числа. В табл. 2.4 и на рис. 2.10 представлены результаты оценки по данным четырех работ для высоких температур. Из приведенных результатов могут быть сделаны некоторые выводы.

Концентрация газа в ВЗП в широком интервале температур (1000–1700 °С) и при выгораниях, больших  $2 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>, лежит в области  $(1 \div 3) \cdot 10^{19}$  ат/см<sup>3</sup>.

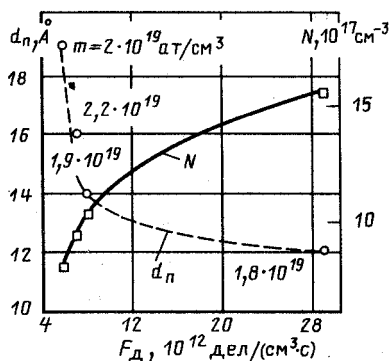


Рис. 2.9. Зависимость диаметра внутризеренных пузырей, их концентрации  $N$  от скорости деления (при  $t_{\text{обл}} = 900 \div 1100$  °С,  $m$  – количество газа, находящегося в ВЗП) [36]

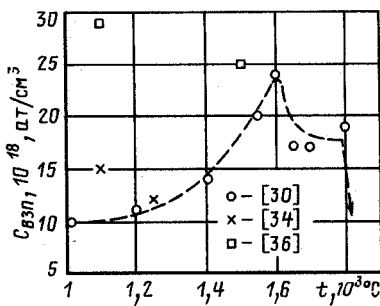


Рис. 2.10. Зависимость концентрации газа, содержащегося в ВЗП,  $C_{\text{ВЗП}}$  от температуры облучения по данным разных авторов:

○, × –  $B = 2 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>; □ –  $B = 1,7 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>

Концентрация газа в растворе (т. е. внутри зерна, вне видимых пузырей) по очень приближенным оценкам может составлять около  $10^{19}$  ат/см<sup>3</sup> при температурах до  $1400$  °С. Данные для оценок при больших температурах отсутствуют.

Данные по зависимости количества газа в ВЗП от температуры противоречивы. Наиболее полные результаты [30] показывают некоторый рост общего количества газа в ВЗП в интервале температур  $1200 - 1600$  °С и при скорости деления  $F_d \approx 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с). При температуре выше  $1700$  °С происходит уменьшение газа в видимых ВЗП, и при температуре выше  $1800$  °С пузыри практически исчезают, что, по-видимому, связано с термической нестабильностью мелких газовых пузырей.

**Образование и поведение межзеренных пузырей (МЗП). Общие положения.** Рост межзеренных пузырей в топливе с равноосной структурой в отличие от роста внутризеренных пузырей происходит до больших размеров (до нескольких микрометров), при этом давление газа в пузырьях мало.

Единичные МЗП небольшого размера имеют хорошо выраженную чечевицеобразную форму (рис. 2.11), угол на периферии чечевицы ( $\psi$ ) определяется отношением поверхностных натяжений по границе  $\gamma_{\text{ГР}}$  и на свободной поверхности  $\gamma$ :

$$\cos \psi = \gamma_{\text{ГР}} / 2\gamma. \quad (2.7)$$

Давление газа в пузырьях  $p_{\text{п}}$  определяется отчасти поверхностными натяжениями и в основном "гидростатическим" давлением

$$p_{\text{п}} = 2\gamma \sin \psi / R_{\text{п}} + p_{\text{Г}}. \quad (2.8)$$

Таблица 2.4. Концентрация газообразных продуктов деления в ВЗП и твердом растворе

Выгорание, $10^{20}$ дел/см <sup>3</sup>	Температура облучения, °С	Концентрация газа, $10^{19}$ ат/см <sup>3</sup>			Источник	Примечание*
		В ВЗП (видимых)	В растворе	В МЗП		
	1000	1	—	—	[30]	—
	1200	1,1	—	—	[30]	—
	1400	1,4	—	—	[30]	—
2	1550	2	—	—	[30]	—
	1600	2,4	—	—	[30]	—
	1650	1,7	—	—	[30]	—
	1700	1,7	—	—	[30]	—
	1800	1,9	—	—	[30]	—
	950	1,1	—	—	[34]	При $t = 1400$ °С до выгорания
2	1100	1,5	—	—	[34]	$2,8 \cdot 10^{19}$ дел/см <sup>3</sup> ВЗП не выявлялись
	1250	1,2	—	—	[34]	
1,7	1100	2,9	—	—	[36]	Диаметр зерна принят
	1500	2,5	—	—	[36]	равным 6 мкм, $C_p$ в
3,4	1100	3,1	—	—	[36]	растворе рассчитана:
	1500	2,7	—	—	[36]	$C_p = C_{\text{общ}} - (C_{\text{ВЗП}} +$
1,7	1150	Принята	1,3	$8 \cdot 10^{-2}$	[36]	$+ C_{\text{МЗП}})$ , давление в
	1420	2,9 и 2,5	1,2	$5 \cdot 10^{-1}$	[36]	МЗП $\approx 2$ МПа
2,2	1350	$C_{\text{ВЗП}} + C_p = 4,5$		1	[32]	$C_{\text{ВЗП}} + C_p$ рассчитана из $C_{\text{общ}}$ и $C_{\text{МЗП}}$

\*  $C_p$  — концентрация газа в растворе;  $C_{\text{ВЗП}}$ ,  $C_{\text{МЗП}}$  — концентрация газа в ВЗП и МЗП;  $C_{\text{общ}}$  — концентрация рожденного газа, без учета газа, вышедшего наружу.

Увеличение числа МЗП на границах приводит к слиянию пузырей и образованию системы взаимосвязанных каналов, которые четко наблюдаются при металлографических исследованиях, рис. 2.12. Наиболее устойчивыми являются каналы, образующиеся на ребрах зерен (так называемые туннели), соединяясь, они создают пространственную сеть, выходящую на наружную поверхность.

В табл. 2.5 даны некоторые результаты наблюдений образования и развития межзеренных пузырей в  $\text{UO}_2$  с равноосной структурой, как видно, число и размер межзеренных пузырей увеличиваются с ростом

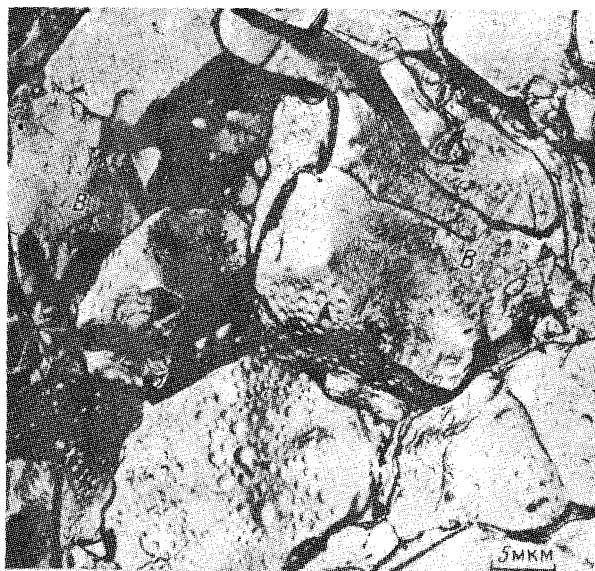


Рис. 2.11. Межзеренные пузыри на границах зерен в облученном  $\text{UO}_2$  [при  $B = 2,2 \cdot 10^{20}$  деп/см<sup>3</sup>,  $t_{\text{обл}} \approx 1100$  °С (РЕМ, излом)] [32]

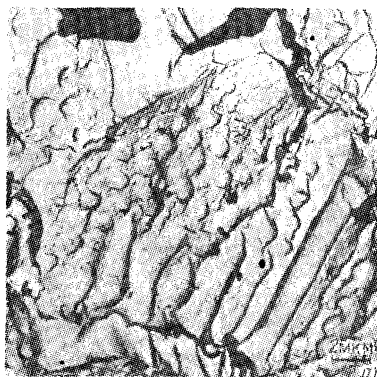


Рис. 2.12. Образование каналов на границах зерен облученного  $\text{UO}_2$ :

$a - B = 2,6 \cdot 10^{20}$  деп/см<sup>3</sup>,  $t_{\text{обл}} \approx 1350$  °С (РЕМ, излом) [32];  $b -$  крупнозернистый  $\text{UO}_2$  ( $L \approx 40$  мкм),  $B = 6,5 \cdot 10^{19}$  деп/см<sup>3</sup>; [сканирующий электронный микроскоп (SEM, излом)] [6]

Таблица 2.5. Характеристика межзеренных пузырей

Температура облучения, °С	Выгорание, $10^{20} \frac{\text{дел}}{\text{см}^3}$	Скорость выгорания, $10^{13} \frac{\text{дел}}{(\text{см}^3 \cdot \text{с})}$	Наличие и характеристика МЗП	Размер, мкм, Å доля в распухании, %	Источник
650–1050	1,8	2,6	Не обнаружено		
1050–1150	1,8	2,6	Отдельные МЗП	0,2–2 мкм	[32]
700–950	2,1	2,6	Отдельные МЗП и пузыри вблизи границ	500–1500 Å	[32]
950–1300	2,1	2,6	Появляются связанные МЗП, пузыри вблизи границ	500–2000 Å	[32]
1300–1400	2,1	2,6	Система связанных каналов и тоннелей, пузыри вблизи границ	500–2000 Å	[32]
1750	$4 \cdot 10^{-1}$	$6 \cdot 10^{-1}$	Чечевицы на плоских границах, частичное слияние	80% – чечевицы, 20% – тоннели	[6, 45]
1750	$8 \cdot 10^{-1}$	$6 \cdot 10^{-1}$	Чечевицы на плоских границах, тоннели на ребрах	5 мкм – в центре, 0,5 мкм – на краю границы	[6, 45]
1750	1,3	$6 \cdot 10^{-1}$	Система связанных пор с выходом на поверхность	15% – чечевицы; 75% – тоннели	[6, 45]
Более 1600	1,9–3,6	1	Поры вытягиваются, взаимосвязаны	–	[30]
Более 1700	1,9–3,6	1	Столбчатая структура, субграницы декорированы пузырьками	–	[30]
Более 1800	1,9–3,6	1	Столбчатая структура, МЗП взаимосвязаны в виде тоннелей вдоль $\nabla T$	–	[30]

выгорания и температуры. При увеличении температуры МЗП появляются при меньших выгораниях: около  $2 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup> при  $t = 1000$  °С и менее  $4 \cdot 10^{19}$  дел/см<sup>3</sup> при  $t = 1750$  °С.

Миграция газа в зерне и накопление его на границах происходит несколькими путями.

1) Выход ВЗП под действием градиента температур (механизм изложен в § 1.3). Скорость перемещения мелких пузырей невелика, например при температуре 1700–1800 °С и градиенте температуры око-

ло  $10^3$  К/см составляет примерно  $10^2$  мкм/ч, этот механизм не является определяющим при выходе газа на границы.

2) Захват газа движущейся границей (механизм изложен в § 1.3) в некоторые моменты работы топлива может быть преобладающим по сравнению с другими механизмами, например в начальный период или при наличии высокой температуры ( $t > 1700$  °С) и существенного градиента температуры, вызывающих рост удлиненных зерен.

3) Диффузия атомов газа, механизм будет подробно изложен ниже (в § 2.3).

Газ, содержащийся в МЗП, подвержен радиационному перерастворению, так же как газ в ВЗП, с той только разницей, что крупные МЗП не могут быть уничтожены одним осколком деления. В этом случае предполагается, что скорость перерастворения пропорциональна плотности газа в пузырьях. Перерастворение может происходить с помощью следующих механизмов: во-первых, прямым столкновением осколка деления с атомами газа, что приводит к внедрению одиночных атомов в решетку топлива; во-вторых, так называемым механизмом "разбрызгивания", который состоит в том, что прохождение осколка через пузырь или вблизи него вызывает местный перегрев стенки пузыря и переконденсацию части материала на холодную стенку, при этом происходит "запечатывание" в решетку  $UO_2$  слоя атомов газа.

Вообще говоря, может происходить и обратный процесс — "впрыскивание" газа в МЗП при прохождении осколка через пузырь или вблизи него путем прямого выбивания атомов газа, растворенных в решетке зерна, или испарением в объем пузыря части материала, содержащего газ.

*Образование системы взаимосвязанных каналов.* Образование в топливе с равноосной структурой системы взаимосвязанных каналов на плоских границах зерен и туннелей на линейных (тройных) границах наблюдается с помощью электронного микроскопа на изломах облученного  $UO_2$  при достижении некоторого критического распухания (рис. 2.12).

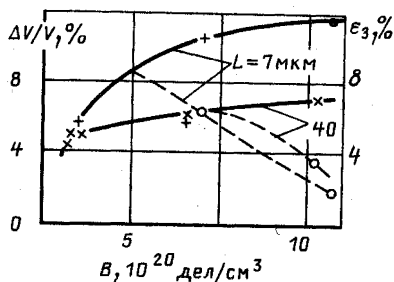
Распухание  $UO_2$ , соответствующее образованию системы связанных каналов  $(\Delta V/V)_{кр}$ , зависит от размера зерен и уменьшается при увеличении последних [6]. Расчеты, проведенные для мелкозернистого  $UO_2$  (3–10 мкм), дают значение критического распухания около 10% [45].

Достаточно убедительное подтверждение образования взаимосвязанных пор и определение  $(\Delta V/V)_{кр}$  получено измерением выхода ГПД в процессе облучения в двух изложенных ниже экспериментах.

Для первого на рис. 2.13 представлено распухание образцов  $UO_2$ , имеющих различный размер зерен (7 и 40 мкм), при температуре 1750 °С в зависимости от выгорания. При распухании, равном 11% (для  $L = 7$  мкм) и 7% (для  $L = 40$  мкм), наблюдалось резкое увели-



Рис. 2.13. Экспериментальная зависимость распухания  $\Delta V/V$  (сплошные линии) и закрытой пористости  $\epsilon_3$  (штриховые линии) от выгорания для образцов  $UO_2$  с разным размером зерна



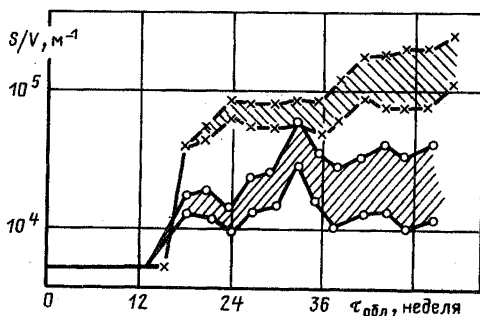
чение открытой пористости, что объясняется образованием системы взаимосвязанных пор. Интересно отметить, что распухание крупнозернистого  $UO_2$  примерно в 1,7 раза ниже, чем мелкозернистого при одном и том же выгорании.

Для второго на рис. 2.14 представлено изменение площади поверхности образцов, изготовленных из  $UO_2$  с мелким ( $L \approx 5$  мкм) и крупным ( $L \approx 10^2$  мкм) зерном по мере облучения при температуре  $t_{обл} = 1450$  °С. Свободная поверхность периодически определялась по выходу при низкой температуре ( $t_{опр} = 750$  °С) короткоживущего изотопа  $^{86}Kr$ , не имеющего предшественника галогена, в этих условиях его выход был пропорционален площади свободной поверхности. Как видно из рис. 2.14, через 15 недель облучения резко увеличилась площадь свободной поверхности: для мелкозернистой структуры это соответствовало  $\Delta V/V \approx 14\%$ , для крупнозернистой структуры эффект был несколько меньше. Увеличение площади поверхности вызвано образованием взаимосвязанной пористости.

После образования связанных каналов весь газ с границ зерен свободно выходит наружу, однако распухание топлива при этом может продолжаться. Объем системы открытых каналов изменяется в результате протекания двух конкурирующих процессов. Во-первых, выход атомов газа в каналы сопровождается увеличением объема последних за счет вакансий, выходящих на стенки каналов вместе с атомами газа

Рис. 2.14. Экспериментальная зависимость отношения площади открытой поверхности к объему  $S/V$  образцов  $UO_2$  от времени облучения [47]:

x — мелкое зерно ( $L \approx 10$  мкм); o — крупное зерно (несколько сот микрометров),  $t_{обл} = 1450$  °С



(конечно, темп распухания при этом будет во много раз меньше, нежели в случае выхода газа в закрытые пузыри). Во-вторых, процесс спекания с выводом пористости на поверхность топлива вызовет его уплотнение. Результирующий процесс определяется соотношением потоков вакансий, приводящих к спеканию, или увеличению диаметра тоннелей, и зависит от скорости деления, внешнего сдерживающего давления, температуры и т. д.; при определенных значениях этих факторов распухание топлива может не происходить после образования системы туннелей. Расчет поведения каналов [45] имеет пока качественный характер ввиду большого числа допущений. В топливе со столбчатой структурой, которая образуется путем переконденсации на оболочку или вследствие роста удлиненных зерен под действием градиента температуры, межзеренная пористость, как правило, уже при малых временах облучения представляет собой взаимосвязанную систему.

*Кинетика роста ВЗП.* Из практики видно, что рост ВЗП в среднем ограничен и размеры ВЗП не выходят за пределы критического ( $d_{\text{к}} = 25 \div 50 \text{ \AA}$ ), который может разрушаться одним осколком деления. Вместе с тем пузыри, располагающиеся на структурных элементах или дефектах (границы зерен, дислокации, включения), растут до больших размеров, тем больших, чем большей энергией обладают структурные элементы.

Так как процесс перерастворения для малых пузырей действует одинаково во всем объеме материала, то остается предположить, что скорость роста пузырей на структурных дефектах выше, чем в матрице материала. Однозначного объяснения этого явления пока не существует, можно предположить три вероятных механизма ускорения роста пузырей на структурных дефектах, не исключаящих один другого.

1. Структурные дефекты являются источником вакансий, которые необходимы для диффузии атомов газа и роста пузыря (тем в большем количестве на 1 атом газа, чем больше радиус пузыря). Если предположить, что процессом, контролирующим скорость роста пузырей, является не поток атомов газа, а поток вакансий, то тогда роль структурных дефектов становится очевидной.

2. Так как структурные дефекты имеют определенную протяженность, а коэффициент диффузии инородных атомов вдоль дефектов выше, чем в матрице, то дефекты могут служить как бы экранами для сбора атомов газа и проводниками их к пузырю, закрепленному на дефекте. Действительно, на ранней стадии число пузырей на плоской границе составляет около  $2 \cdot 10^{16}$  пуз/м<sup>2</sup> [36], т. е. на каждый пузырь приходится около  $5 \cdot 10^3 \text{ \AA}^2$  площади поверхности зерна. Поскольку газ подходит с обеих сторон к границе и коэффициент диффузии по границе намного больше коэффициента диффузии в матрице, то площадь сбора газа составит около  $10^4 \text{ \AA}^2$ . Если взять ВЗП радиусом

10 Å, то его площадь поверхности, являющаяся площадью сбора газа, составит около  $10^3 \text{ Å}^2$ , что примерно на порядок меньше, чем в МЗП.

3. Существенное ускорение роста пузырей при высокой температуре, особенно на ранней стадии, может происходить в результате дополнительного выхода газа за счет собственного перемещения протяженного дефекта, например роста зерна. Движение протяженного дефекта способствует также слиянию мелких пузырей, расположенных на дефектах. При металлографических исследованиях облученного топлива часто наблюдается отсутствие МЗП на границах столбчатых зерен и бикристаллов [46], что можно объяснить отсутствием миграции этих границ.

Недостаточно ясно понимание еще одного факта, связанного с границами зерен при высоких температурах и больших скоростях деления. Видимые ВЗП располагаются только вблизи границ зерен и крупных полостей, что говорит о том, что в этой зоне зародыши пузырей более устойчивы (например, крупнее) и скорость роста их выше. Из общих соображений это может быть связано с повышенной концентрацией атомов газа или (и) вакансий вблизи границ и крупных полостей.

**Экспериментальное изучение газового распухания.** Экспериментальное изучение распухания компактного топлива усложняется влиянием на процесс большого числа параметров реального облучения: температуры, градиента температуры, противодействия оболочки, изменения структуры, нестабильности режима облучения и т. д.

Наиболее эффективными для раскрытия закономерностей распухания являются немногочисленные специально поставленные реакторные эксперименты, исключющие влияние некоторых параметров, и эксперименты при высокой температуре поверхности (оболочки) топлива. Такими работами являются, например, исследования [47] на моно- и поликристаллических сферах из  $\text{UO}_2$ , представленные в § 2.2, исследования [48], а также [19, 49]. Рассмотрим основные результаты двух последних работ в свете изложенного выше.

В [48] таблетки  $\text{UO}_2$  облучались в свободном (ненагруженном) состоянии или в толстостенной оболочке с торцевым переменным нагружением, отношение длины топливного столба к его диаметру при этом равнялось 40/3; схемы экспериментальных сборок представлены на рис. 2.15. Условия облучения характерны малым перепадом температуры по радиусу таблеток. На рис. 2.16 представлены результаты распухания таблеток, облученных без оболочки. Как видно, объемное распухание стремится к насыщению при увеличении выгорания тем быстрее, чем выше температура. При температуре  $2000^\circ\text{C}$  наблюдается распухание, достигающее 25%, что противоречит критическому распуханию в результате образования взаимосвязанной пористости. В толстостенной оболочке с приложением осевой нагрузки, как показано на схеме, распухание не чувствительно к действию давления вплоть до 50 МПа. Это свидетельствует о том, что осевое распухание, по-види-

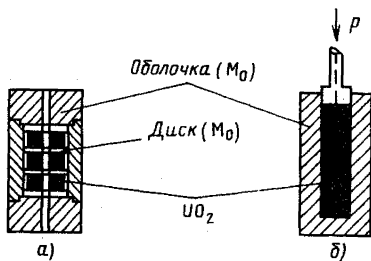


Рис. 2.15. Схема капсул при облучении образцов  $UO_2$  [48]:

а – свободное распухание; б – толстостенная оболочка

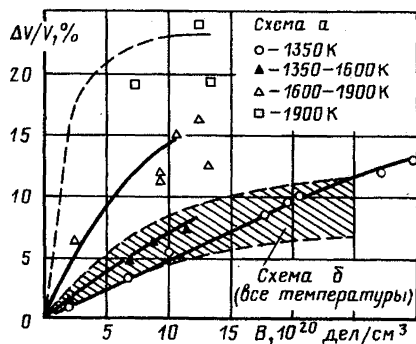


Рис. 2.16. Зависимость распухания образцов  $UO_2$ , облученных по схемам а и б (рис. 2.15), от выгорания при различных температурах [48]

тому, больше сдерживается трением о внутреннюю поверхность оболочки, чем торцевым нагружением.

Авторы сделали попытку оценить количество газа, содержащегося на границах зерен и в крупных порах ( $d_p > 100 \text{ \AA}$ ), с одной стороны, и в ВЗП, с другой. Для этого облученное топливо размалывали до получения зерен меньше 1 мкм. Вышедший при этом газ относили к крупным пузырькам. Порошок после помола растворяли кислотой, собранный при этом газ рассматривали как содержащийся в растворе или в ВЗП. На рис. 2.17 представлены результаты этих измерений для ненагруженного образца. Как видно, газ в ВЗП и в растворе, в соответствии с изложенным выше, выходит на насыщение при выгораниях, существенно меньших  $2,5 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>. Газ в крупных пузырьках и МЗП накапливается с уменьшающимся темпом, но не выходит на насыщение при  $1500 \text{ K}$  вплоть до выгорания  $12,5 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>.

На рис. 2.18 представлена зависимость содержания газа в растворе и ВЗП от температуры. Как видно, до  $T \approx 1200 \text{ K}$  концентрация газа постоянна, а затем падает, приближаясь к нулю. Это постоянство определяется постоянством радиационной составляющей коэффициента диффузии. Снижение концентрации газа, начиная с  $T \approx 1200 \text{ K}$ , противоречит результатам исследований с применением электронного микроскопа: в соответствии с этими исследованиями концентрация газа в ВЗП начинает уменьшаться при  $T > 1900 \text{ K}$ . Частичное объяснение заключается, по-видимому, в том, что наблюдаемое уменьшение концентрации в данных опытах может происходить из-за уменьшения растворенного газа. Кроме того, происходит рост зерен  $UO_2$ , а измельчение проводится до частиц размером менее 1 мкм, что приводит к занижению количества газа внутри зерна и тем большому, чем крупнее зерно.

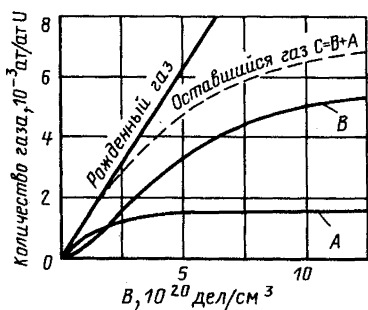


Рис. 2.17. Зависимости содержания ГПД в растворе и в мелких ВЗП (А), в МЗП и крупных (более 100 Å) ВЗП (В) от выгорания при температуре 1500 К [48]

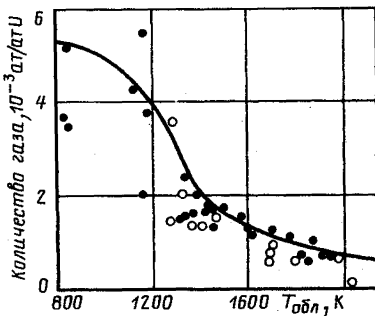


Рис. 2.18. Экспериментальная зависимость количества ГПД в растворе и ВЗП  $UO_2$  от температуры при  $B > 7,5 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup> [48]:

○ – свободное распухание (схема на рис. 2.15, а); ● – распухание в толсто-стенной оболочке (схема на рис. 2.15.б)

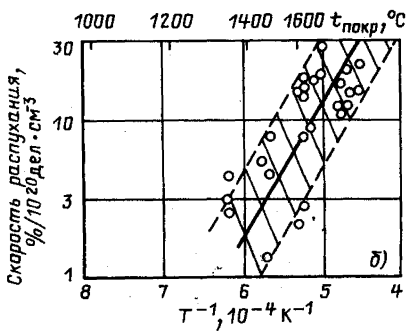
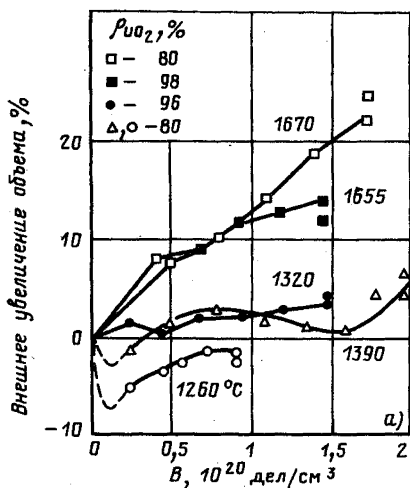


Рис. 2.19. Экспериментальная зависимость увеличения объема образцов  $UO_2$  с покрытием из W-Re от выгорания (а) [19] и температуры (б) [49] при различной исходной плотности

В [19, 49] образцы топлива из  $UO_2$  с покрытием толщиной 0,5 мм из сплава W-Re облучались при температурах на поверхности в интервале 1260–1900 °С до выгорания  $2,4 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup> при  $F_d = (1,2 \div 1,7) \times 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с). Периодически проводилось нейтрографирование образцов с определением наружного диаметра топлива. Результаты измерений представлены на рис. 2.19. Как видно, объем образца, измеренный по наружному диаметру, растет линейно с выгоранием и скорость распухания увеличивается с увеличением температуры облучения.

Отсутствие насыщения распухания с ростом выгорания и температуры, а также незначительное изменение плотности топлива, отмеченное авторами, не соответствующее изменению наружного диаметра образца даже при низких температурах (1260–1500 °С), по-видимому, можно объяснить тем, что деформация образцов вызвана ГПД, вышедшими из топлива в центральную полость, а также эффектами теплообмена, а не распуханием собственно  $UO_2$ .

### 2.3. Миграция газообразных продуктов деления

**Миграция под воздействием быстрых частиц.** Воздействие быстрых частиц, и прежде всего осколков деления, вызывает выход ГПД из поверхностных слоев топлива путем протекания двух механизмов.

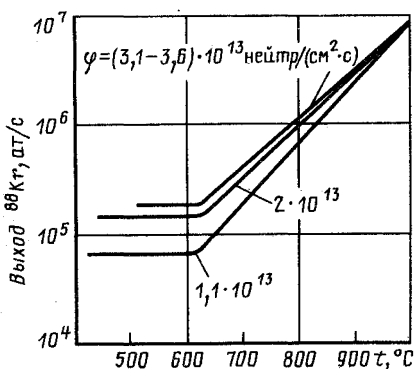
“Прямая отдача” – выход газообразных осколков деления непосредственно после акта деления из поверхностного слоя глубиной, равной среднему пробегу осколков. Так как при выходе через поверхность открытой поры осколок может иметь запас кинетической энергии, то велика вероятность повторного внедрения осколка в противоположную стенку поры, поэтому выход “прямой отдачей” пропорционален геометрической площади поверхности образца; кроме того, выход прямо пропорционален скорости деления и не зависит от постоянной распада нуклида.

“Нокаут” – испарение ГПД, залегающих в приповерхностном слое при попадании в сферу действия осколка. Установлено, что при выходе осколка через поверхность происходит испарение некоторого количества молекул  $UO_2$ , в числе этих молекул могут быть атомы нейтральных газов. Выход механизмом “нокаут” пропорционален общей площади поверхности образца, включая поверхность открытых пор, и зависит от константы распада и скорости деления. Количество атомов урана (а следовательно, и атомов ГПД), испаряемых с поверхности одним осколком деления  $K$ , сильно зависит от размера зерна диоксида: в сверхмелкозернистых образцах ( $d_{\text{зер}} \approx 50 \text{ \AA}$ )  $K \approx 10^4$  ат/оск, а для обычного топлива с зерном размером 5–10 мкм это значение невелико:  $K = (5 \div 10)$  ат/оск [50].

Выход ГПД под воздействием быстрых частиц не зависит от температуры, и так как по абсолютному значению он составляет, как правило, менее  $10^{-4}$  числа рожденных ГПД, то проявляется только в области низких температур, когда термически активируемые процессы слабы. На рис. 2.20 в качестве примера показан выход ГПД под воздействием быстрых частиц при разных температурах и скоростях деления.

Прямое воздействие быстрых частиц на атомы газа приводит еще к одному важному процессу миграции, рассмотренному ранее (§ 2.2): переходу атомов газа из газовой фазы пузырей в решетку топлива – радиационному перерастворению. Этот процесс поддерживает концент-

Рис. 2.20. Зависимость установившегося выхода  $^{88}\text{Kr}$  из  $\text{UO}_2$  от температуры при разных плотностях потоков нейтронов [51]



рацию газа в растворе выше термодинамически равновесной и имеет место практически при всех температурах, так как термически активируемый переход происходит лишь при высоких температурах и давлениях.

Кроме прямого воздействия быстрых частиц на атомы газа под облучением в топливе существует дополнительное радиационное возбуждение, вызванное прежде всего существованием трековых областей. Это увеличивает средний коэффициент самодиффузии и соответственно диффузию атомов газа. Этот механизм проявляется при  $F_d = 10^{13}$  дел/( $\text{см}^3 \cdot \text{с}$ ) до температур 1000–1200 °С.

Расчетная зависимость, предложенная в [44], имеет вид

$$D_{p.a} \approx 1,5 \cdot 10^{-31} F_d,$$

где  $D_{p.a}$  — коэффициент радиационно-активируемой диффузии ГПД. При  $F_d = 10^{13}$  дел/( $\text{см}^3 \cdot \text{с}$ )  $D_{p.a} \approx 10^{-17}$   $\text{см}^2/\text{с}$ , что соответствует экспериментальным данным. Коэффициент радиационно-активируемой диффузии достаточен для перемещения атомов газа на малые расстояния с образованием мелких пузырей, размеры которых находятся на грани разрешения электронной микроскопии. При увеличении температуры выше 1000–1200 °С определяющую роль начинают играть термически активируемые механизмы диффузии и отжига точечных дефектов.

Миграция ГПД посредством концентрационной диффузии. При высоких температурах наблюдается миграция ГПД, экспоненциально зависящая от температуры, которая представляет собой диффузионный процесс перемещения атомов Хе и Кг, а также их предшественников через решетку топлива. Ничтожно малые адсорбция и растворимиков нейтральных газов в твердом теле не исключают механизмов диффузии атомов через решетку твердого тела. Процесс радиационного перерастворения при облучении постоянно поддерживает концентрацию растворенных атомов газа на уровне, превышающем термодинамически равновесный, что обеспечивает существенные миграционные потоки.

Механизм диффузии одиночных атомов газа пока достоверно не установлен. Предполагается, что атомы нейтральных газов с малым атомным радиусом (He, Ne) могут перемещаться по междоузлиям, а атомы

с большим радиусом (Xe, Kr) — по позициям замещения. Из экспериментов по выходу ГПД из облученного  $UO_2$  при высоких температурах было установлено, что наиболее часто встречающаяся энергия активации близка к энергии активации самодиффузии урана. Эксперименты с легированием  $UO_2$  разновалентными металлами показали, что ГПД не диффундируют по урановой подрешетке. Было также показано, что они не диффундируют по кислородной подрешетке или позициям внедрения. Истинный механизм диффузии пока не ясен, наиболее вероятно предположение, что атомы газа диффундируют по вакансионному комплексу, включающему в себя, например, одну вакансию урана и две вакансии кислорода. Образование таких комплексов может происходить как термическим путем, так и в результате прохождения быстрых частиц, при этом (в соответствии с рис. 1.3) облучение, по-видимому, определяет концентрацию элементарных дефектов до температуры около  $1300^\circ C$ , выше преобладают термически активируемые комплексы. Энергия активации создания и перемещения вакансионного комплекса должна быть близка к энергии активации самодиффузии иона урана как менее подвижного, что и наблюдается экспериментально. Элементарные комплексы находятся в динамическом равновесии: возникают и распадаются. Атом газа, попадая в комплекс, стабилизирует его, делает более устойчивым.

Атомы газа в комплексе с вакансиями мигрируют в концентрационном поле на стоки, которыми в зерне являются: пузыри (ВЗП и МЗП), примесные включения, дислокации, поры, границы и субграницы зерен. Атомы газа образуют вторую фазу — газовые пузыри, которые энергетически более выгодны, чем газ в растворе. Стоки не являются абсолютными, так как имеет место обратный переход газа в решетку под воздействием быстрых частиц и в некоторых случаях термическим путем. Газовые пузыри на границах зерен обладают бесконечной "емкостью": вначале они растут, как изолированные пузыри, затем сливаются, и накопившийся газ выходит наружу. Внутризеренные (матричные) пузыри, как показано в § 2.2, начиная с некоторого выгорания, становятся практически постоянными по размерам и концентрации, после чего весь рождающийся газ выходит на границы зерен и далее — за пределы топлива.

*Кинетика выхода ГПД из зерна на границы.* Для описания кинетики выхода ГПД из зерна на границы использованы решения общепринятых уравнений диффузии в твердом теле в предположении, что внутризеренные пузыри отсутствуют и весь рожденный газ участвует в диффузионном процессе. Эти решения были рассмотрены в [52]. Для объекта, в котором рассматривается миграция нуклида, решается диффузионное уравнение

$$\partial C / \partial t = D \cdot \nabla^2 C + \beta - \lambda C, \quad (2.9)$$

где  $\beta$  — скорость рождения нуклида;  $\lambda$  — постоянная распада;  $C$  —



концентрация нуклида в данной точке объекта в момент времени  $\tau$ ;

$$D^* = D_0^* \exp(-Q/RT). \quad (2.10)$$

Решение этого уравнения для сферического плотного образца радиусом  $a$  в случае выхода стабильных газов под облучением ( $\beta \neq 0$ ,  $\lambda = 0$ ) запишется так:

$$f = 1 - \frac{6a^2}{\pi^4 D^* \tau} \left\{ \frac{\pi^4}{90} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} \exp\left(-\frac{D^* n^2 \pi^2 \tau}{a^2}\right) \right\}, \quad (2.11)$$

при малых выходах ( $D^* \tau < a^2/\pi^2$ )

$$f = \frac{4}{a} \sqrt{\frac{D^* \tau}{\pi}} - \frac{3D^* \tau}{2a^2}, \quad (2.12)$$

где  $f$  — отношение количества газа, вышедшего из образца за время  $\tau$ , к количеству газа, рожденному в образце к моменту  $\tau$ .

Решение для диффузии и выхода короткоживущих радиоактивных изотопов в процессе облучения для установившегося выхода ( $\beta \neq 0$ ,  $\lambda \neq 0$ ,  $C \neq 0$ ,  $\partial C/\partial \tau = 0$ ):

$$f = (3/a) \sqrt{D^*/\lambda}. \quad (2.13)$$

Решение для диффузии и выхода стабильных нуклидов при отжиге предварительно облученного образца ( $\beta = 0$ ,  $\lambda = 0$ ) имеет вид

$$f = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D^* \tau}{a^2}\right), \quad (2.14)$$

для малых времен отжига (или малых коэффициентов диффузии)  $\pi^2 D^* \tau/a^2 < 1$  и  $f < 0,2$

$$f = \frac{6}{a} \sqrt{\frac{D^* \tau}{\pi}} - \frac{3D^* \tau}{a^2} \approx \frac{6}{a} \sqrt{\frac{D^* \tau}{\pi}}, \quad (2.15)$$

где  $f$  — отношение количества газа, вышедшего из образца за время  $\tau$ , к количеству газа в образце в начальный момент.

В том случае если выход газа происходит из поликристаллического образца, в котором существует открытая пористость, т. е. реальная площадь поверхности выхода ГПД больше геометрической площади поверхности образца, образец может быть представлен в виде конгломерата сфер, суммарная площадь поверхности которых равна сумме площади поверхности образца, включая открытые поры. При этом в (2.11) — (2.15)  $a = 3V/S$ , где  $V$  — объем образца;  $S$  — реальная площадь поверхности, включая открытые поры, обычно определяемая методом адсорбции газа.

Для случая взаимодействия диффундирующего газа с внутризеренными пузырьками, которые рассматриваются в качестве временных не диффундирующих ловушек, решение получено в [53]. В общем случае при миграции к границам зерен или к поверхности образца атом газа имеет вероятность  $g$  быть поглощенным пузырем и вероятность  $b$  быть возвращенным в матрицу и продолжать диффузию. В этом случае решается система уравнений

$$\left. \begin{aligned} \partial C / \partial \tau &= D \nabla^2 C + \beta + bm - (\lambda + g)C; \\ \partial m / \partial \tau &= gC - (\lambda + b)m, \end{aligned} \right\} \quad (2.16)$$

где  $C$  — концентрация атомов газа в растворе (в межпузырьковом пространстве);  $m$  — концентрация атомов газа в пузырьках;  $D$  — истинный коэффициент диффузии атомов газа в межпузырьковом пространстве. Вероятность захвата  $g$  в соответствии с уравнением Хема [54] пропорциональна концентрации пузырьков  $N$ , их размеру  $R$  и истинному коэффициенту диффузии  $D$ :

$$g = 4\pi DRN. \quad (2.17)$$

Вероятность  $b$  в основном совпадает с радиационным перерастворением  $\eta$ ; при высоких температурах и больших давлениях появляется также возможность термического перерастворения. Для стабильных газов ( $\lambda = 0$ ) при условии многократного поглощения пузырьками и перерастворения атомов газа на пути к границе зерна или поверхности, которое может быть записано в виде

$$b + g \gg D\pi^2/a.$$

Спейт [53] получил выражение, определяющее выход газа на границы зерна, полностью совпадающее с решением диффузионного уравнения без ловушек и перерастворения (2.11), если вместо коэффициента диффузии  $D$  в это решение подставляется "кажущийся коэффициент диффузии"  $D^*$  в виде

$$D^* = Db/(b + g). \quad (2.18)$$

Множитель  $b/(b + g)$  дает соотношение кажущегося и истинного коэффициентов диффузии и равен для установившегося процесса доле газа, находящегося в растворенном состоянии, т. е. в состоянии диффузии.

Для определенных, не очень больших, времен решение может быть упрощено аналогично (2.12) и представлено в виде

$$f = \frac{4}{a} \sqrt{\frac{Db\tau}{\pi(b + g)}} - \frac{3Db\tau}{2a^2(b + g)}, \quad (2.19)$$

временной интервал применимости этой формулы Спейт определил как

$$(b + g)a^2/(D\pi^2b) > \tau > 5/b. \quad (2.20)$$

Эта формула применима для достаточно широкой области параметров облучения, представляющих практический интерес. Так, для зерна  $UO_2$  размером около 10 мкм, содержащего ВЗП радиусом около 10 Å и концентрацией  $10^{17} \text{ см}^{-3}$  для  $b \approx 10^6 \text{ с}^{-1}$ , верхний и нижний пределы времени облучения по (2.20) равны  $2,5 \cdot 10^9$  и  $5 \cdot 10^6$  с соответственно.

Представленные выше решения справедливы при отсутствии накопления газа на границе сферы  $N_r = 0$ , где  $N_r$  — количество газа в МЗП на единицу площади границы (это справедливо для пористого топлива или стадии облучения после образования взаимосвязанных каналов). Если на границах зерен (сфер) образуются закрытые газовые пузыри, т. е.  $N_r$  растет, то необходимо учитывать радиационное перерастворение газа с границ. По модели Спейта [53] перерастворенный газ в среднем выбивается на расстояние  $\xi$  от границы зерна и концентрация перерастворенного газа  $C_\xi$  определяется динамическим равновесием потока выбитых атомов  $bN_r$  и потока атомов, растекающихся из слоя  $\xi$  путем диффузии:

$$bN_r = 2DC_\xi/\xi; \quad (2.21)$$

$C_\xi$  возрастает пропорционально  $N_r$ , но если атомная диффузия является единственным путем выхода газа на границы, то  $C_\xi$  не может превысить максимальной концентрации растворенного газа в центре зерна  $C_m$ , которая равна:

$$C_m = \beta\tau b/(b + g). \quad (2.22)$$

Результирующий поток газа на границу с учетом перерастворения из МЗП

$$\frac{dN_r}{d\tau} = A - bN_r = A \left( 1 - \frac{C_\xi}{C_m} \right) = A \left[ 1 - \frac{(b + g)N_r\lambda}{2D\beta\tau} \right], \quad (2.23)$$

где  $A$  — поток газа на границу без учета перерастворения из МЗП.

Таким образом, выход газа из сферы диффузионным путем во время облучения можно представить следующим образом. До  $\tau \approx 5/b$  можно предположить, что кажущийся коэффициент диффузии  $D^*$  должен быть максимальным и близким к истинному, так как количество газа, участвующее в диффузии, близко к рожденному, т. е.  $C \approx \beta\tau$ . По мере выгорания происходит накопление газа в матрице и образование ВЗП, содержащего количество газа  $m$ , при этом увеличивающаяся доля газа, равная  $m/\beta\tau$ , выпадает из диффузионного процесса, в связи с этим кажущийся коэффициент диффузии уменьшается до тех пор, пока не наступит насыщение  $C$  и  $m$ ; в дальнейшем коэффициент  $D^*$  должен снова возрасти.

Указанная модель отражает механизм процессов, однако ее практическое применение в настоящее время затруднено, так как недостаточно изучены основные показатели  $b$  и  $g$ , характеризующие роль ловушек.

Обработка экспериментальных результатов измерения выхода ГПД при отжигах и в процессе облучения проводится, как правило, с определением кажущегося коэффициента диффузии  $D^*$  по уравнениям, аналогичным (2.11), в предположении, что все ГПД, образующиеся в процессе деления, принимают участие в диффузии в виде одиночных атомов. Несмотря на то что такой подход не в полной мере отражает истинный механизм процесса, его применение позволяет с определенными оговорками сравнивать получаемые результаты и проводить практические расчеты по выходу ГПД из поли- и монокристаллического топлива.

**Миграция ГПД совместно со структурными дефектами.** *Миграция ГПД с границами зерен.* Захват движущейся границей атомов газа и газовых пузырей может приводить к сравнительно быстрому накоплению газа на границе и образованию крупных МЗП, особенно в начальный период облучения, когда скорость перемещения границы максимальная.

Если скорость выхода газа в результате миграции границы превышает диффузионный выход, то процесс перерастворения газа из МЗП создает вдоль границы зерна на расстоянии  $\xi$  барьер концентрацией  $C_\xi$ , препятствующий диффузионному выходу газа на границу [8]. По мере увеличения выгорания возрастает максимальная концентрация газа, растворенного в зерне  $C_m$ ; когда  $C_m$  превысит  $C_\xi$  начнется диффузионный выход газа на границу зерна.

В [8] проведен расчет глубины выгорания, при которой начинается диффузионный выход газа из зерна на границу. Авторы предполагают, что для ненагруженного топлива максимальная концентрация  $C_\xi$ , определенная по (2.21), соответствует моменту образования взаимосвязанной пористости, которая возникает при содержании газа на границе  $7 \cdot 10^{14}$  ат/см<sup>2</sup> (что близко к расчетным и экспериментальным значениям).

*Таблица 2.6. Выгорание, при котором начинается диффузионный выход ГПД на границы;  
 $b\xi \approx 10^{-11}$  см/с;  $F_d \approx 6,8 \cdot 10^{12}$  дел/(см<sup>3</sup> · с)  
(200 Вт/см<sup>3</sup>)*

Температура, С	Коэффициент диффузии газа, $10^{-15}$ см <sup>2</sup> /с	Выгорание, $10^{19}$ дел/см <sup>3</sup>
1600	5,4	1,8
1500	1,5	2,5
1400	0,35	4,0
1300	0,10	13,8

Выгорание, при котором начинается диффузионный выход газа, рассчитано для разных температур, результаты оценки представлены в табл. 2.6. Движущиеся субграницы и дислокации выполняют в миграции ГПД такую же роль, как границы зерен.

Таблица 2.7. Скорость перемещения пор разной формы (температура центра поры 2000 К,  $\nabla T = 2500$  К/см, давление гелия в поре 0,1 МПа при температуре 20 °С)

Форма поры	Размер, мкм	Скорость перемещения, $10^{-8}$ см/с		
		Передний край	Середина	Задний край
Сфера	$d_{\text{п}} = 200$	0,25	0,18	0,13
Цилиндр	$R_{\text{п}} = 20$	0,25	0,13	0,10
	$L_{\text{п}} = 200$	—	—	—
Диск	$d = 100$	—	—	—
	$h = 20$	0,42	0,42	0,42

*Миграция ГПД с движущимися порами.* Общие закономерности движения пор и газонаполненных пузырей подробно изложены в § 1.3. Газонаполненные пузыри, двигаясь к центру топлива, переносят часть газа и выделяют его в центральную полость; крупные пузыри на пути движения захватывают мелкие малоподвижные поры и растворенный газ, тем самым осуществляя очистку топлива от ГПД. Эффективность очистки определяется числом и скоростью движения пузырей.

Скорость движения пузырей зависит от многих факторов: формы и размера пузырей, градиента температуры и абсолютной температуры, давления газа в пузыре и т. д. В табл. 2.7 представлены результаты теоретических расчетов [16] скоростей движения крупных пор путем механизма испарение—конденсация.

Наиболее эффективно очистка топлива от ГПД происходит при движении линзообразных пор (ЛОП). В [19] экспериментально измерена скорость движения ЛОП при температурах и градиентах температуры, близких к значению, приведенному в табл. 2.7. Результаты измерения скорости движения ЛОП представлены ранее (см. рис. 1.12). Как видно, они достаточно хорошо совпадают с расчетами [16], здесь же даны зависимости, рассчитанные авторами [19] по моделям Мак-Эвана и Олдфилда.

Число и периодичность движения ЛОП зависят прежде всего от режима работы топлива. Как уже отмечалось ранее (см. § 1.3), ЛОП образуются в основном из трещин, которые возникают при резких тепловых ударах; кроме того, источниками ЛОП могут служить пустоты на границе топливо—оболочка в твэлах с высокотемпературной оболочкой. Поэтому эффективность очистки зависит от конкретных типов твэлов и режимов их эксплуатации.

Авторы [37] считают, что выход газа с пузырями может быть заметен при температуре выше 1700 °С. В табл. 2.8 приведены их расчетные оценки вклада движения пузырей в общий выход ГПД из топлива твэла с инконелевой оболочкой реакторов на быстрых нейтронах.

Таблица 2.8. Вклад движения пузырей в общий выход ГПД из топлива ( $d_{\text{табл}} = 5,38$  мм,  $t_{\text{центра}} = 2200$  °С)

Тип пузыря	Давление в объеме, МПа	Время прохождения через столбчатые кристаллы при $T = 1700 \div 2500$ °С, ч	Вклад в общий выход ГПД не более, %
Линза	Небольшое	3	20
Сфера	1	70	5
Цилиндр	1	100	3
Мелкий сферический	10	1680	1

Влияние различных факторов на выход ГПД из топлива. Как уже указывалось, миграция газовых продуктов деления чувствительна к различным внешним и внутренним факторам. Рассмотрим влияние основных из них на примере диоксида урана.

*Влияние вида нуклида на миграцию.* В процессе деления образуется спектр ГПД с различными периодами полураспада: от  $^{137}\text{Xe}$ , имеющего период полураспада 229,4 с, до долгоживущих нуклидов ( $^{85}\text{Kr}$ ,  $T_{1/2} = 10,73$  года) и стабильных нуклидов ( $^{87}\text{Kr}$ ,  $^{136}\text{Xe}$  и др.).

Кроме того, предшественниками ГПД могут быть такие элементы, как I, Te, Br, Rb, которые имеют отличные от нейтральных газов химические свойства и соответственно растворимость и коэффициент диффузии. Если  $T_{1/2}$  предшественника сравним с  $T_{1/2}$  газа, то его миграцию необходимо учитывать отдельно, в этом случае относительный выход ГПД

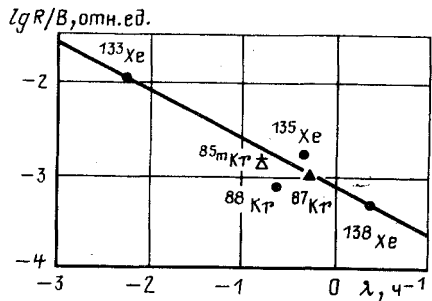
$$f = 3 \left[ \frac{\coth y - 1/y}{y(1 - y^2/x^2)} + \frac{\coth x - 1/x}{x(1 - x^2/y^2)} \right], \quad (2.24)$$

где  $x = a\sqrt{\lambda_1/D_1^*}$ ,  $y = a\sqrt{\lambda_2/D_2^*}$ ; индексы "1" и "2" означают предшественник и газ соответственно.

Период полураспада нуклида, естественно, сказывается на его выходе. Экспериментально установленная зависимость выхода ГПД от  $\lambda$  в основном совпадает с зависимостью, предсказанной диффузионной теорией:  $f \sim \sqrt{1/\lambda}$  (рис. 2.21). Если измеряется выход короткоживущего нуклида, у которого  $T_{1/2} \ll \tau$  (где  $\tau$  — время диффузии из центра зерна до открытой пористости или из плотного компактного образца до внешней поверхности), то данный нуклид успевает выйти только из поверхностных слоев топлива и характеризует состояние именно этих слоев. Так, глубина выхода нуклидов  $^{88}\text{Kr}$  ( $T_{1/2} = 2,8$  ч) и  $^{135}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 9,2$  ч) при температуре 1450 °С ( $D_{\text{Kr}} = 3,2 \cdot 10^{-14}$  см<sup>2</sup>/с и  $D_{\text{Xe}} = 2,4 \cdot 10^{-13}$  см<sup>2</sup>/с) [55] составит примерно  $2 \cdot 10^5$  и  $1 \cdot 10^4$  см соответственно. В некоторых случаях измерение выхода короткожи-

Рис. 2.21. Зависимость относительного выхода ГПД ( $R/B$ ) от постоянной распада ( $\lambda$ ) в процессе облучения монокристаллов  $UO_2$  при  $t_{обл} = 1450^\circ C$  [46]:

— произвольно размещенная линия  $R/B \sim \lambda^{-1/2}$ ;  $\blacktriangle$  — эксперимент;  $+$  — расчет;  $\bullet$  — совпадение эксперимента с расчетом



вущих нуклидов может дать дополнительную информацию о состоянии диффузионной среды, например характеризовать истинную площадь открытой поверхности или изменения площади поверхности при образовании взаимосвязанной пористости. Стабильные и долгоживущие нуклиды с  $T_{1/2} \gg \tau$  выходят из всего объема зерна (или образца) и поэтому наиболее чувствительны к взаимодействию с ВЗП.

**Плотность топлива.** Повышение плотности топлива уменьшает абсолютный выход ГПД, сохраняя без изменения  $Q$  и  $D_0$  в (2.10). При малой плотности  $\rho < 90\%$  теоретической плотности параметр  $a = 3V/S$  близок к размеру зерна, при больших плотностях параметр  $a$  составляет несколько сот микрон. Подобная зависимость наблюдается как при отжиге, так и под облучением.

**Состав диоксида урана.** При увеличении содержания кислорода в диоксиде урана наблюдается увеличение коэффициента диффузии ГПД (табл. 2.9) и резкое снижение энергии активации диффузии, что свидетельствует о появлении дополнительных структурных вакансионных комплексов.

Некоторые исследователи [57, 58] объясняют наблюдаемый экспериментально "всплеск" выхода ГПД в начальный момент отжига облученных образцов избытком кислорода в поверхностных слоях  $UO_2$ , в то же время существует объяснение этого явления с помощью модели ловушек [51, 59].

**Влияние размера зерен.** Работ по влиянию размера зерен (гранц зерен) на миграцию продуктов деления (благородных газов и гало-

Таблица 2.9. Влияние содержания кислорода в  $UO_2$  на диффузию ГПД [56]

O/U	$Q$ , кДж/моль	$D_0$ , $см^2/с$	$D$ (при $t = 1400^\circ C$ ), $см^2/с$
1,934 – 1,997	$578 \pm 8,4$	$4 \cdot 10^2 - 1,6 \cdot 10^3$	$3,7 \cdot 10^{-16} - 15 \cdot 10^{-15}$
$2,000 \pm 0,005$	$377 \pm 38$	$5 \cdot 10^{-2} - 5$	$8,7 \cdot 10^{-14} - 8,7 \cdot 10^{-12}$
2,021 – 2,24	$163 \pm 38$	$1 \cdot 10^{-8} - 1,2 \cdot 10^4$	$8,0 \cdot 10^{-14} - 8,0 \cdot 10^{-10}$

генов) недостаточно, и пока нет полной ясности в этом вопросе. Однако некоторые положения установлены достаточно убедительно.

Как показано в § 2.2, в плотном  $\text{UO}_2$  по мере выгорания при достижении определенного распухания  $(\Delta V/V)_{\text{кр}}$  по границам зерен образуются взаимосвязанные каналы, которые резко увеличивают площадь свободной поверхности и сокращают диффузионный путь для выходящих атомов газа.

В связи с наблюдаемым явлением необходимо различать влияние границ до образования взаимосвязанной пористости и после него. Как показано в [6], критическое распухание  $(\Delta V/V)_{\text{кр}}$  наступает раньше в крупнокристаллическом материале. Выход ГПД из мелкозернистых образцов на закритической стадии выше, чем выход из крупнозернистых, примерно на один порядок [47, 60].

Экспериментально установлено [46], что под облучением в период времени до  $(\Delta V/V)_{\text{кр}}$  относительный выход  $R/B$  короткоживущих нуклидов благородных газов ( $T_{1/2} < 5$  сут) практически не зависит от размера зерна и одинаков для образцов с мелким зерном ( $L = 5 \div 10$  мкм), крупным зерном ( $L$  — равно нескольким сотням микрометров) и монокристаллов при  $t = 1450$  °С.

Однако необходимо иметь в виду, что изучение влияния границ зерен на выход газа методом измерения  $R/B$  короткоживущих нуклидов малоэффективно. Теоретические оценки [61] показывают, что, для того чтобы почувствовать зернограничную диффузию при размере зерна  $L = 5$  мкм, размере образца  $R = 0,5$  мм и  $\lambda = 1 \cdot 10^6$  с<sup>-1</sup>, необходимо, чтобы коэффициент диффузии по границе был больше коэффициента в теле зерна в  $10^2 - 10^3$  раз.

В эксперименте [62] по анализу газа под оболочкой топливной ампулы делается предположение о том, что долгоживущие нуклиды более чувствительны к зернограничной диффузии, чем короткоживущие, однако данные по этому вопросу практически отсутствуют.

*Влияние выгорания топлива.* Влияние времени облучения или глубины выгорания топлива на выход ГПД исследовался во многих работах путем отжигов после различных доз облучения и прямым измерением выхода газа в процессе облучения. Характер зависимостей в большой степени различается в разных работах в связи с различием условий облучения и методов измерения.

Наиболее полные исследования в этой области проведены в [47, 55, 60, 63] начиная с 1975 г. Авторы измеряли в процессе облучения выход нуклидов с разным периодом полураспада вплоть до практически стабильного нуклида <sup>85</sup>Kr на монокристаллических и поликристаллических образцах с различным размером зерен до температуры около 1450 °С. Обработка полученных результатов проведена по диффузионной модели Буса с получением кажущегося коэффициента диффузии  $D^*$ . При миграции газ взаимодействует с внутри- и межзерен-



ными пузырями, которые претерпевают количественные и качественные изменения в процессе облучения, что должно приводить к изменению кажущегося коэффициента диффузии. Естественно, что результаты, полученные на поликристаллах, отражают взаимодействие ГПД с ВЗП и МЗП, а на монокристаллах только с ВЗП.

На значение  $D^*$  будет влиять время жизни нуклидов Kг и Хе, использованных для измерений. Обнаружено, что чем больше время жизни нуклида, тем сильнее изменение коэффициента диффузии  $D^*$  в процессе облучения. К сожалению, подавляющая часть реакторных измерений  $D^*$  проводится с использованием короткоживущих нуклидов или нуклидов  $^{135}\text{Xe}$  и  $^{133}\text{Xe}$ , имеющих несколько больший период полураспада.

По временной зависимости выхода ГПД наиболее надежно установлено следующее:

1. При измерении выхода короткоживущих нуклидов из монокристалла величина  $D^*$  не изменяется в процессе облучения, что свидетельствует о незначительном влиянии ВЗП на диффузию этих нуклидов. Действительно, глубина диффузии короткоживущих нуклидов при температуре 1400–1500 °С не превышает 300 Å, что близко к расстоянию между видимыми ВЗП, равному 150 Å;  $D^*$ , рассчитанные для этого случая, составляют [63]:

$$D_{\text{Kг}}^* = 7,9_{4,4}^{12,5} \cdot 10^{-20} \text{ м}^2/\text{с} \quad (\text{анализ по } ^{85\text{m}}\text{Kг}, ^{87}\text{Kг}, ^{88}\text{Kг});$$

$$D_{\text{Хе}}^* = 2,15_{1,5(5)}^{3,0} \cdot 10^{-19} \text{ м}^2/\text{с} \quad (\text{анализ по } ^{135}\text{Хе}, ^{138}\text{Хе}).$$

2. Для поликристаллических образцов выход короткоживущих нуклидов резко увеличивается при достижении некоторого критического распухания, при котором образуется система открытых межзеренных каналов, приводящих к увеличению отношения  $S/V$  (рис. 2.14). Интересно отметить, что в двух экспериментах, проведенных при разных скоростях деления, образование открытой пористости, определенное по выходу короткоживущих нуклидов, наступило при одной и той же глубине выгорания, равной около  $4 \cdot 10^{19}$  дел/см<sup>3</sup> (0,16%) (рис. 2.22). Одновременно с исходными образцами в этом эксперименте облучался образец, в котором с помощью предварительного облучения уже была образована открытая пористость. В этом случае отношение  $R/B$  оказалось примерно постоянным, а  $S/V$  составляло 108 мм<sup>-1</sup> при измерении изотопов Хе и 129 мм<sup>-1</sup> при измерении изотопов Kг, что примерно в 10 раз больше, чем в образцах, не достигших критического распухания.

3. Измерение выхода ГПД с помощью практически стабильного изотопа  $^{85}\text{Kг}$  на монокристалле выявило следующую картину (рис. 2.23). Коэффициент диффузии  $D^*$ , рассчитанный по (2.11), в начальный период (выгорание составляет  $\sim 3,8 \cdot 10^{19}$  дел/см<sup>3</sup>) уменьшается при-

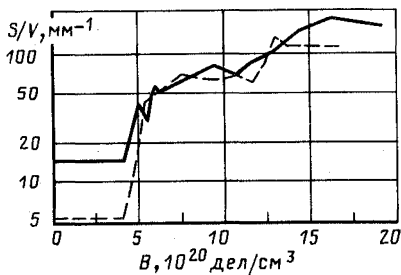


Рис. 2.22. Зависимость  $S/V$  от выгорания [63]:

— —  $F_d \approx 1,2 \cdot 10^{13}$  дел/( $\text{см}^3 \cdot \text{с}$ ); - - - -  $F_d = 4,3 \cdot 10^{12}$  дел/( $\text{см}^3 \cdot \text{с}$ )

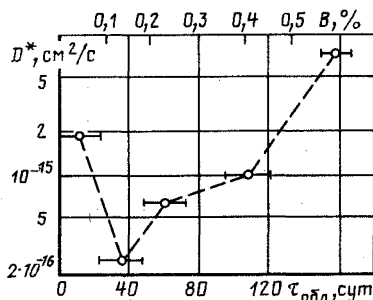


Рис. 2.23. Экспериментальная зависимость изменения кажущегося коэффициента диффузии ГПД от времени облучения ( $D^*$  рассчитано по выходу "стабильного" изотопа  $^{85}\text{Kr}$  из монокристаллов  $\text{UO}_2$ ) [63]:

○ — среднее значение  $D^*$  в цикле облучения

мерно на порядок, а затем возрастает. Это изменение объясняется образованием мелких ВЗП, поглощающих часть ГПД. Снижение концентрации фактически диффундирующих ГПД по сравнению с концентрацией, принятой в расчете, приводит к кажущемуся снижению коэффициента диффузии  $D^*$ . При увеличении выгорания наступает насыщение газа в ВЗП, что приводит к постепенному росту  $D^*$ .

$D^*$  для  $^{85}\text{Kr}$  в начальный момент близко к  $D^*$  для короткоживущих нуклидов, что свидетельствует о малом влиянии ВЗП в том и другом случае. Минимальное значение  $D^*$  приходится на выгорание, близкое к выгоранию  $(1,7 \div 3,2) \cdot 10^{19}$  дел/ $\text{см}^3$ , при котором появляются первые видимые пузыри [34].

Для поликристалла также наблюдается подъем скорости выхода ГПД и на его фоне всплеск выхода при выгорании около  $4 \cdot 10^{19}$  дел/ $\text{см}^3$ , что соответствует выбросу накопленных в межзеренных порах ГПД при образовании системы каналов.

Уменьшение  $D^*$  в начальный период наблюдалось также в других работах. В [64] облучали ампулы с порошком  $\text{UO}_2$  при температуре  $1123^\circ\text{C}$  и с определением выхода изотопов  $^{138}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$  и  $^{133}\text{Xe}$ ;  $D^*$  рассчитывали по модели эквивалентных сфер. До выгорания  $2 \cdot 10^{16}$  дел/ $\text{см}^3$  наблюдалось постоянное значение  $D^*$ , при увеличении выгорания до  $5 \cdot 10^{18} - 1 \cdot 10^{19}$  дел/ $\text{см}^3$  происходит постепенное снижение кажущегося коэффициента диффузии, после чего — выход на постоянное минимальное значение. В эксперименте общее выгорание составляло около  $10^{19}$  дел/ $\text{см}^3$ , в связи с чем не наблюдался последующий подъем  $D^*$ , связанный со стабилизацией ВЗП.

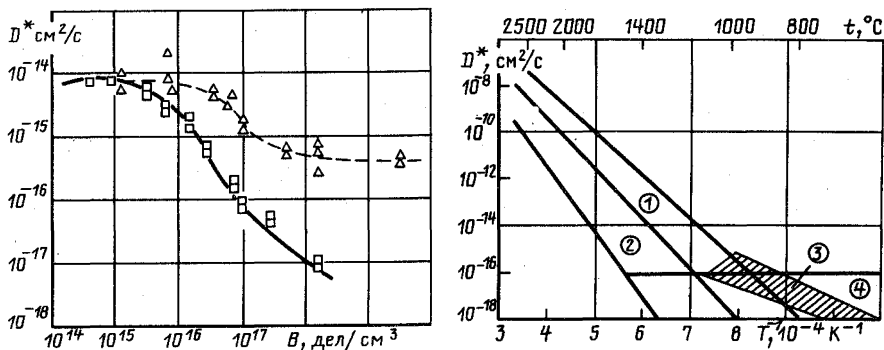


Рис. 2.24. Зависимость изменения кажущегося коэффициента диффузии ГПД в  $\text{UO}_2$  от выгорания (измерен при отжиге после облучения) [65]:

$\Delta$  – спеченный  $\text{UO}_2$  плотностью 90% теоретической;  $\square$  – монокристалл ( $t_{\text{отж}} = 1400^\circ\text{C}$ )

Рис. 2.25. Зависимость кажущегося коэффициента диффузии ГПД в  $\text{UO}_2$  от температуры [37]

В [65] в процессе отжига образцов, облученных при низких температурах, также обнаружено падение значения  $D^*$  на один порядок в поликристалле и на три порядка в монокристалле (рис. 2.24). Последующий подъем значения  $D^*$ , характерный для измерения под облучением, в данном случае не происходит, так как отсутствует процесс стабилизации ВЗП, связанный с наступлением равновесия процессов радиационного перерастворения и термического захвата ГПД пузырьками.

**Зависимость  $D^*$  от температуры.** Работами многочисленных исследователей к настоящему времени получена достаточно определенная картина зависимости кажущегося коэффициента диффузии от температуры.

В [37] на основе наиболее представительных экспериментальных работ, выполненных до 1972 г., получена обобщенная температурная зависимость  $D^*$  (рис. 2.25). На графике выделены некоторые зоны, характерные для тех или иных условий испытания или состояния материала.

В низкотемпературной области (до  $1100\text{--}1200^\circ\text{C}$ ) коэффициент диффузии при облучении (зона 4) не зависит от температуры и определяется скоростью деления (радиационно-активируемая диффузия). При отжиге после облучения значения  $D^*$  располагаются в зоне 3.

Миграция атомов газа в областях 1 и 2 при температурах выше  $1200^\circ\text{C}$  связана в первую очередь с самодиффузией вакансий в подрешетках урана и кислорода. Мигрируя, вакансии образуют комплексы, через которые происходит диффузия одиночных атомов газа.

Ширина зон при данной температуре зависит от факторов, которые были перечислены выше. Согласно [37], верхняя граница зоны 1 характеризует диффузию в малодефектной матрице  $UO_2$ , нижняя граница зоны 2 характеризует диффузию в наиболее дефектной матрице  $UO_2$ , например в процессе послереакторного отжига образцов, облученных до глубокого выгорания. Граница между областями 1 и 2 больше всего соответствует коэффициентам диффузии при облучении до небольших выгораний.

На рис. 2.26 показаны более поздние экспериментальные результаты зависимости  $D^*$  от температуры в интервале температур от 800 до 1700 °С, определенные для различных материалов по выходу ГПД при облучении [60, 63] и по росту внутризеренных пузырей [30, 70].

Как видно из рисунка, кривые  $D^* = f(1/T)$ , полученные в процессе облучения при температурах ниже 1300 °С, имеют меньший наклон, чем кривые, полученные в процессе отжига после облучения; это является результатом радиационно-стимулированного ускорения диффузии ГПД. Кроме того, можно отметить, что значение  $D^*$ , полученное методом измерения размера ВЗП, несколько ниже (на 1–1,5 порядка) значения, полученного по выходу ГПД.

Авторы [63] для  $D^*(1/T)$  во всей температурной области предлагают обобщенное феноменологическое выражение

$$D^* \sim D_0^* \exp(-Q/RT) + S^2 j_v V + AF_d. \quad (2.25)$$

Первый член выражения отражает высокотемпературную диффузионную миграцию ГПД, определяемую концентрацией и подвижностью кластеров и вакансий в катионной и анионной подрешетке  $UO_2$ , находящихся в термическом равновесии с решеткой; он зависит от температуры и не зависит от скорости деления.

Второй член отражает промежуточную область, в которой подвижность ГПД определяется термической подвижностью вакансий и кластеров  $UO_2$ , концентрация последних контролируется в основном радиационными повреждениями от осколков деления. В (2.25)  $S$  и  $j_v$  — расстояние и частота диффузионных скачков катионных вакансий соответственно;  $V$  — радиационно-стимулируемая концентрация вакансий: для области температур 800–1400 °С, авторы предложили упрощенную формулу для определения  $V$ :

$$V = (k' / j_v z)^{1/2},$$

где  $k'$  — скорость образования дефектов при облучении, отнесенная к одному атому;  $z$  — число атомов вокруг точечного дефекта, способных вызвать его рекомбинацию.

Третий член определяет низкотемпературную радиационно-стимулируемую диффузию ГПД, не зависящую от температуры и возрастающую пропорционально скорости деления  $F_d$ .

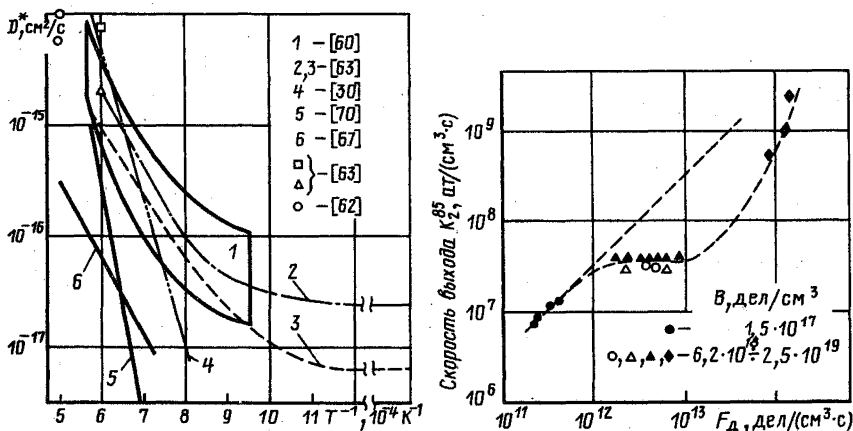


Рис. 2.26. Зависимость кажущегося коэффициента диффузии ГПД в  $\text{UO}_2$ , определенного разными методами, от температуры:

1-3 — по выходу короткоживущих изотопов  $\text{Kг}$  и  $\text{Xe}$  при облучении; 4 — по размеру ВЗП после облучения; 5 — по размеру ВЗП, отжиг после облучения; 6 — по выходу  $^{133}\text{Xe}$ , отжиг после облучения;  $\Delta$  — в начале испытания;  $\square$  — после выгорания около  $1,5 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup> — по выходу  $^{85}\text{Kг}$  при облучении;  $\circ$  — по накоплению ГПД в ампулах

Рис. 2.27. Зависимость газовыделения из  $\text{UO}_2$  от скорости выгорания для образцов с разной структурой и глубиной выгорания (результаты приведены к  $1400^\circ\text{C}$  и нормализованы к единице  $S/V$  [68]):

$\bullet$  — монокристалл (сфера);  $\blacktriangle$  — мелкое зерно (диск);  $\triangle$  — монокристалл (цилиндр);  $\circ$  — мелкое зерно (цилиндр);  $\blacklozenge$  — плавленый  $\text{UO}_2$  (сфера)

Представленные результаты достаточно хорошо согласуются качественно, однако имеют значительный разброс значений коэффициента диффузии и энергии активации, вызванный влиянием перечисленных выше параметров.

**Влияние скорости деления и переходных режимов.** В низкотемпературной области, как указывалось выше, относительный выход ГПД увеличивается при увеличении скорости деления  $F_d$ . В переходной области энергия активации выхода ГПД в соответствии с (2.25) также зависит в значительной степени от  $F_d$ , изменяясь от  $104,5$  кДж/(г  $\times$  моль) при высоких скоростях деления до  $293$  кДж/(г  $\cdot$  моль) при низких скоростях деления или вне реакторных отжигах.

В области температур, где преобладают термически активируемые механизмы миграции ГПД, образования и отжига точечных дефектов, имеются отрывочные и достаточно противоречивые данные о влиянии скорости деления на выход ГПД. Эти данные представлены на рис. 2.27. Как видно, в общем с увеличением скорости деления, ско-

рость выхода ГПД увеличивается, однако в интервале скоростей деления  $F_d = (2 \div 9) \cdot 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с) установлена независимость скорости выхода от  $F_d$ .

На основании общих закономерностей увеличение скорости выгорания  $F_d$  ведет к увеличению коэффициента перерастворения  $\eta$ , а значит и к увеличению концентрации диффундирующей части газа, что выразится в увеличении кажущегося коэффициента диффузии  $D^*$ .

Изменение режимов облучения по  $T$  и  $F_d$  должно вызвать переходные процессы, связанные с установлением нового уровня насыщения ВЗП и проявляющиеся в изменении кажущегося коэффициента  $D^*$ , при этом на переходных процессах изменение  $D^*$  не подчиняется простым диффузионным зависимостям, так как происходит не только изменение концентрации диффундирующего газа и температуры, но и изменение диффузионной среды.

Экспериментальные методы исследования миграции ГПД. Существует несколько экспериментальных методов изучения миграции ГПД в топливе и определения параметров этой миграции. Методы имеют принципиальные различия, которые должны учитываться при обработке результатов и получении сопоставимых параметров миграции. В большинстве работ по экспериментальным данным определяется коэффициент диффузии. В некоторых работах, посвященных главным образом изучению выхода продуктов деления из топлива, определяются специальные параметры, характеризующие временную и температурную зависимости выхода ГПД. Рассмотрим основные экспериментальные методы.

*Отжиг образца, содержащего определенное количество нейтрального газа.* Газ образуется в образце в результате предварительного облучения при низких температурах ( $t \leq 500$  °С) в реакторе, на ускорителе или выделяется в результате распада легирующей добавки <sup>228</sup>Th. В процессе отжига радиометрически или масс-спектрометрически измеряется выход нейтрального газа в виде стабильных или долгоживущих нуклидов. В связи с простотой эксперимента, указанным методом получено максимальное число данных. Естественно, что из-за отсутствия радиационной составляющей перерастворения должно происходить быстрое уменьшение концентрации диффундирующей части газа, и результаты, полученные в этих экспериментах, могут быть применены для описания миграции газа в топливе вне поля облучения. Если температура отжига низка ( $t < 0,5t_{пл}$ ), то термически активируемое перерастворение газа ничтожно мало, и только при  $T \geq 1800$  °С и больших давлениях в пузырьках термическое перерастворение может играть заметную роль. Отжиг образца может проводиться изотермически, изохронно (постоянная скорость подъема температуры) и комбинированно (изохронный выход на определенную температуру и изотермическая выдержка). Изотермический отжиг позволяет получать параметры, характеризующие объемную миграцию; изохронный отжиг чувствителен к поверх-

ностным процессам, которые могут существенно отличаться от объемных.

*Измерение выхода ГПД из топлива в процессе облучения в реакторе при рабочей температуре.* Этот метод позволяет наряду с долгоживущими нуклидами исследовать выход короткоживущих нуклидов (например,  $^{138}\text{Xe}$  с периодом полураспада около 15 мин). Метод более сложен, чем метод отжига, особенно в отношении поддержания постоянных режимов испытания и создания температурных условий, приближенных к изотермическим.

Процессы, протекающие в твзлах, наиболее целесообразно рассчитывать с использованием параметров миграции ГПД, полученных непосредственно в процессе облучения. Однако необходимо иметь в виду, что, во-первых, по мере выгорания происходит изменение диффузионной среды, описанное выше, приводящее к существенному изменению  $D^*$ , и, во-вторых, должна учитываться зависимость кажущегося коэффициента диффузии от периода распада нуклида, используемого для определения параметров миграции.

*Измерение размера внутризеренных пузырей с помощью электронной микроскопии до и после отжига предварительно облученных образцов или непосредственно после облучения в реакторе при рабочей температуре.* В этом случае, если расстояние между пузырями намного больше их радиуса и концентрация газа на поверхности пузыря равна нулю, скорость диффузионного роста сферического пузыря может быть получена из решения уравнения Фика в виде

$$dm/dt = 4\pi DRC, \quad (2.26)$$

где  $m$  — количество газа в пузыре;  $C$  — концентрация газа в решетке, вдали от пузыря;  $R$  — радиус пузыря. Принимая  $m = 4\pi R^3/3\nu$ , где  $\nu$  — постоянная Ван-дер-Ваальса, можно записать:

$$dR/dt = \nu DC/R, \quad \text{или} \quad R^2 = R_0^2 + 2\nu DCt. \quad (2.27)$$

При отжиге облученного образца определяются радиус пузыря до отжига ( $R_0$ ) и после него ( $R$ ) и время отжига, коэффициент диффузии рассчитывается по (2.27). При расчете  $D$  по размерам пузырей непосредственно после облучения предполагается, что время жизни пузыря  $\tau$  ограничено взаимодействием его с осколком деления и определяется по (2.5) и (2.6).

В методе электронной микроскопии основная неопределенность заключается в недостаточном знании концентрации растворенного газа  $C$  и размера зародыша пузыря  $R_0$  в варианте измерения  $R$  непосредственно после облучения, кроме того, метод сложен и трудоемок.

В принципе, можно определять параметры диффузии по накоплению газа на границах зерен, используя в этом случае (2.23). Попытка определения энергии активации по выходу газа на границы была сделана в [36].

Кроме указанных принципиальных отличий в методиках измерения на миграцию ГПД влияют и другие параметры, связанные с внешними условиями испытания и характеристикой образцов. Указанные причины приводят к большому разбросу экспериментально определенных параметров диффузии и затрудняют корректную обработку экспериментальных данных. Так, разброс кажущегося коэффициента диффузии достигает четырех порядков, а наиболее часто измеряемые значения энергии активации группируются вблизи трех значений: 209, 293 и 544 кДж/(г · моль) [68].

Таким образом, коэффициенты диффузии, определяемые в различных работах, можно сопоставлять и использовать для расчетов только с учетом характеристик топлива и параметров облучения. Наибольшие возможности в этом отношении дает определение кажущегося коэффициента диффузии в экспериментах под облучением, однако здесь необходимо следить за тем, чтобы на диффузию не накладывались другие механизмы перемещения газа, связанные прежде всего с перепадом температуры в топливе. Кроме того, необходимо в экспериментах с поликристаллами различать выход газа до образования системы каналов и после нее, так как учет изменения радиуса эффективной сферы  $a$ , например методом газовой адсорбции, возможно, не дает однозначной поправки на изменение площади поверхности выхода газа и диффузионного пути.

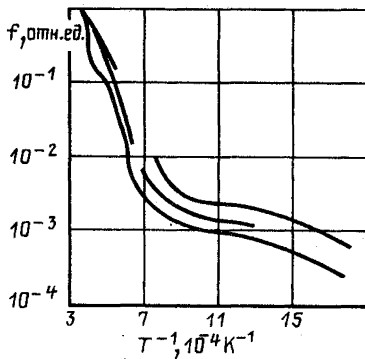
В некоторых оригинальных и обзорных работах проводится попытка статистической обработки экспериментальных данных по выходам ГПД и коэффициентам диффузии. В [68] обработка всех результатов независимо от способа их получения, приведенных к температуре 1400 °С в виде кажущегося коэффициента диффузии, дала значение  $D^*$ , равное  $6,2 \cdot 10^{15}$  см<sup>2</sup>/с. Значение  $Q$ , наиболее часто встречающееся во внутри- и вне реакторных экспериментах при высоких (более 1400 °С) температурах, составляет около 293 кДж/(г · моль).

В [59] представлены результаты измерения выхода ГПД в процессе кратковременного отжига слабооблученных образцов  $UO_2$  [плотность потока  $\varphi \leq 10^{10}$  нейтр/(см<sup>2</sup> · с)], а также данные по утечке  $^{85}Kг$  из  $UO_2$  при реакторных испытаниях (выгорание около  $8 \cdot 10^{18}$  дел/см<sup>3</sup>). На рис. 2.28 показана температурная зависимость относительной утечки ГПД при отжиге облученных образцов и при реакторных испытаниях. Экспериментальные результаты обрабатывались в [59] с использованием активационной модели [59, 69], которая позволяет описать кинетику выхода продуктов деления при отжиге облученных образцов или при облучении образцов в реакторе, в том числе при изменении режимов облучения. Основные положения активационной модели заключены в следующем:

1). В начальный момент времени отжига все ГПД располагаются в ловушках, под которыми понимаются различные несовершенства кристаллического материала, начиная от точечных дефектов и кончая круп-



Рис. 2.28. Зависимость относительной утечки  $^{135}\text{Xe}$  и  $^{85}\text{Kr}$  из  $\text{UO}_2$  от температуры при отжигах слабооблученных образцов и в результате длительного облучения [59]



ными (равными нескольким микрометрам) пузырьками; при этом ловушки имеют спектр по "энергиям активации", которая характеризует энергию связи газового атома с дефектом.

2). В процессе нагревания образца происходит термическое высвобождение атомов газа из ловушек с "мгновенным" выходом наружу или переходом в ловушки с большей энергией связи. Наблюдаемое в экспериментах резкое увеличение выхода продуктов деления при быстром увеличении температуры описывается спектральной характеристикой  $m$ , относительно медленное изменение выхода продуктов деления при длительных изотермических испытаниях характеризуется постоянной утечки  $a$  (термической составляющей) и комплексом  $\sigma\Phi$ , характеризующим радиационное воздействие на продукты деления. Так, для частного случая длительного испытания ( $\tau \rightarrow \infty$ ) относительный выход описывается выражением

$$f = m + \frac{a + \sigma\Phi}{\lambda + a + \sigma\Phi} (1 - m),$$

где  $\lambda$  — постоянная распада.

Значения  $f$  для кратковременных отжигов ( $f \approx m$ ) и длительных реакторных испытаний ( $f$  включает в себя  $m$  и  $a$ ) близки, что свидетельствует о малости  $a$ . Найденные в экспериментах значения  $m$ ,  $a$ ,  $\sigma\Phi$  позволяют проводить расчеты утечки продуктов деления из ТВЭЛов с топливом изученного типа.

## ГЛАВА 3

### ПОВЕДЕНИЕ ТОПЛИВА

#### В ТВЭЛАХ РЕАКТОРОВ РАЗЛИЧНЫХ ТИПОВ

##### 3.1. Введение

Описанию конструкции ТВЭЛов, их назначения и условий эксплуатации, анализу требований к ТВЭЛам и их топливным и конструкционным материалам посвящена обширная литература [71–74]. ТВЭЛы являются наиболее напряженным конструкционным узлом ядерного реактора,

испытывающим комплекс тепловых и механических нагрузок, температурных и радиационных воздействий. В связи с тем, что энергетические и экономические показатели реактора, эффективность его использования и эксплуатационные характеристики в значительной степени определяются работоспособностью его твэлов, задача выбора и обоснования их параметров при проектировании и прогнозировании ресурсного поведения является одной из главных при разработке реактора. Решение этой задачи на практике осуществляется сочетанием расчетно-теоретических и экспериментальных исследований, конструкционных и технологических разработок, причем в последнее время благодаря большому объему накопленных экспериментальных данных по ресурсному поведению твэлов и топлива в прогнозировании их работоспособности приобретают вес расчетные методы, основанные на современных представлениях о процессах, происходящих в твэле, и о свойствах входящих в него материалов, в том числе топливных композиций.

Такой подход к выбору и обоснованию параметров твэлов обеспечивает возможность расчетно-теоретического описания изменения параметров топлива в процессе облучения, казалось бы, даже независимо от типа реактора. Однако многочисленные опытные данные по процессам в топливе получены для конкретных условий работы твэлов тех или иных видов, и обобщения, проводимые на их основе, делаются также для конкретных типов твэлов. Сложившаяся практика объясняется тем, что условия эксплуатации твэлов, требования к ним и их конструкция, определяемые главным образом типом реактора, в котором они используются, сильно различаются. Так, в тепловых реакторах с водяным охлаждением основная проблема заключается в обеспечении герметичности твэла и достижении глубоких выгораний при хорошем балансе нейтронов в реакторе. Для реакторов-размножителей на быстрых нейтронах специфична потребность в более высоких напряжениях и глубоких выгораниях, а главная особенность высокотемпературных газоохлаждаемых реакторов (ВТГР) заключается в возможности получения высоких температур теплоносителя. В соответствии с этими особенностями формируются и требования к твэлам. Для твэлов энергетических реакторов общим является требование хорошего удержания продуктов деления и достижение максимально глубокого выгорания, которое все же более важно для быстрых реакторов с существенно более высокими энергонапряженностями и температурами. Наиболее принципиальным моментом для твэлов ВТГР остается высокая рабочая температура, тогда как в высокотемпературном твэле для электрогенерирующего элемента, где он служит одновременно эмиттерным узлом термоэмиссионного преобразователя, главным становится требование геометрической стабильности его оболочки и в связи с этим — расширение возможностей по используемым материалам. Поэтому разработка твэлов для каждого типа реакторов проводится самостоятельно, и опыт, накопленный при этом, используется главным

образом непосредственно для решения специфичных в каждом конкретном случае задач.

В практике расчетного моделирования указанная ситуация проявляется в том, что разрабатываемые подходы к описанию поведения топлива при облучении в твэлах реактора определяются особенностями их конструкции, назначением, условиями эксплуатации и ориентированы на конкретный тип твэлов. В то же время, весьма значительный объем фактической информации по процессам в топливе, полученный в различных условиях работы как по параметрам облучения, так и по типам твэлов, создает необходимые предпосылки для разработки обобщенного описания поведения топлива в процессе облучения вне зависимости от типа реактора и заставляет искать пути расширения областей применения существующих подходов и моделей. Попытки расширения области применения конкретных подходов связаны, прежде всего, с необходимостью включения в рассмотрение ряда дополнительных процессов, не специфичных для исходных положений моделей, что требует их пересмотра и уточнения на основе детального изучения изменения характеристик топлива при облучении в твэлах реакторов разных типов.

Поэтому в настоящей главе рассматриваются особенности поведения ядерного топлива в привязке к твэлам различных типов реакторов. Это тем более необходимо, что, помимо чисто теоретического, описания (по большей части качественного) моделей поведения топлива при облучении для всеобщего применения, к сожалению, пока не имеется.

### **3.2. Твэлы энергетических реакторов с водяным и жидкометаллическим теплоносителем**

**Условия работы твэлов в реакторе.** В настоящее время накоплен большой опыт по разработке, изготовлению и способам контроля твэлов энергетических реакторов на тепловых нейтронах с водяным охлаждением и реакторов на быстрых нейтронах с жидкометаллическим охлаждением [71, 72]. На рис. 3.1 и 3.2 показаны принципиальные схемы конструкций твэлов ВВЭР-440 и БН-600. В обоих случаях, как и в других реакторах таких типов, используются твэлы цилиндрической формы с сердечником из керамического топлива, заключенным в металлическую оболочку с зазором, заполняемым инертным газом, как правило, гелием. Основное требование к твэлам энергетических реакторов: достижение максимально глубокого выгорания — должно обеспечиваться при сохранении в течение всей кампании высокой герметичности. Закономерности поведения топлива, определяющие работоспособность твэлов реакторов данного типа, во многом схожи. Основные отличия связаны, главным образом, с различием физических характеристик и назначением этих реакторов.

Практически во всех водо-водяных реакторах используются твэлы с сердечником из спеченного  $UO_2$  плотностью 93–97% теоретической

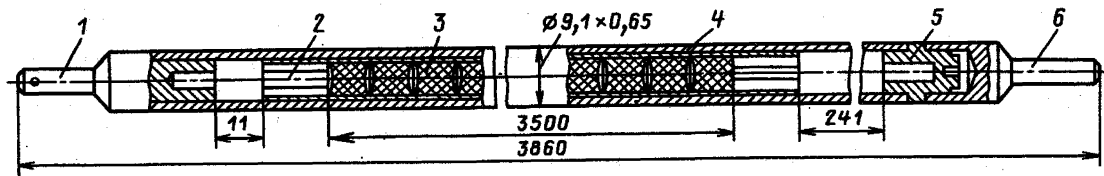


Рис. 3.1. Конструкционная схема твэла ВВЭР [72]:

1 – нижняя заглушка; 2 – разрезная втулка; 3 – топливная таблетка; 4 – оболочка; 5 – втулка; 6 – наконечник

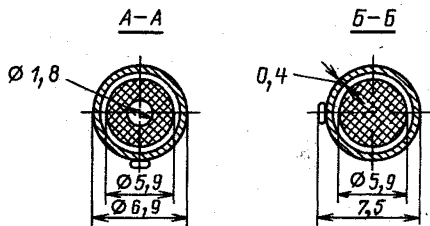
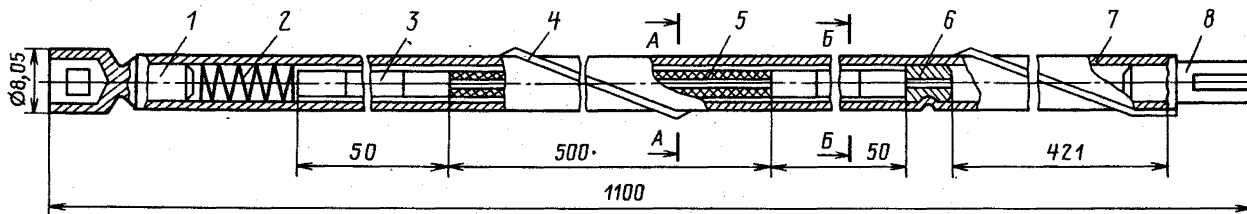


Рис. 3.2. Конструкционная схема экспериментального твэла реактора БН-600 [75]:

1 – верхний наконечник; 2 – пружина; 3 – отражатель; 4 – дистанционирующая лента; 5 – активная часть твэла; 6 – втулка; 7 – оболочка твэла; 8 – нижний наконечник

в оболочке из слаболегированных сплавов циркония, в отечественных реакторах, например, Н-1 ( $Zr + 1\% Nb$ ). Заполнение внутреннего объема твэла гелием предусматривается наряду с улучшением теплопроводности зазора для повышения устойчивости оболочки, которая должна противостоять внешнему давлению теплоносителя более 10 МПа. Радиационные изменения и распухание топлива в твэлах реакторов с водяным теплоносителем сравнительно невелики. Это обусловлено относительно низким по сравнению с быстрыми реакторами-размножителями выгоранием топлива, составляющим несколько (2–4) процентов, незначительной протяженностью зоны выросших равноосных зерен, обычно вносящей определяющий вклад в распухание, и сдерживающим влиянием низкотемпературной околооболочечной зоны с исходной мелкозернистой структурой. Поэтому при разработке твэлов этого типа основные вопросы обеспечения надежности связываются со стойкостью материала оболочки, в условиях коррозионного воздействия продуктов деления, выходящих из топлива, и омывающего твэл теплоносителя при температуре на стенке 300–350 °С. Из условий обеспечения безопасной эксплуатации твэлов реакторов с водяным охлаждением наиболее существенные связаны с предотвращением возможности достижения температуры плавления топлива и ограничением температуры оболочки не более некоторой критической, которая определяется протеканием пароциркониевой реакции и составляет приблизительно 1200 °С.

В реакторах-размножителях на быстрых нейтронах спектр нейтронов более жесткий, удельная (на единицу объема активной зоны) загрузка топлива выше. Для интенсивного воспроизводства ядерного топлива плотность энерговыделения и выгорание должны быть выше, чем в реакторах на тепловых нейтронах. В современных быстрых реакторах выгорание ядерного топлива достигает примерно 10%. С учетом этих факторов большое значение имеют интенсивность потока быстрых нейтронов и их флюенс, определяющие радиационные повреждения материалов. Стремление к достижению глубоких выгораний обуславливает использование топливных композиций  $[UO_2 \text{ повышенного обогащения или } (U, Pu)O_2]$  с более низкой плотностью, которая с учетом зазора между топливом и оболочкой составляет 8,5–9,0 г/см<sup>3</sup>. Заполнение свободного объема твэла гелием в основном преследует цель обеспечения высокой теплопроводности зазора для сохранения исходной структуры внешнего слоя горючего и снижения диаметральной деформации. Отличительной особенностью твэлов этих реакторов является также более высокая температура оболочки, которая в горячих точках может превышать 700 °С. Поэтому в качестве материала оболочек используются жаростойкие нержавеющие стали. Облучение стальной оболочки большими флюенсами быстрых нейтронов ( $F > > 10^{26}$  нейтр/м<sup>2</sup>,  $E > 0,1$  МэВ) в диапазоне температур (0,3–0,7)  $T_{пл}$  приводит к вакансионному распуханию оболочки. Так, объемное распухание аустенизированных сталей типа 16–15 (отечественных и зару-

бежных) при флюенсе быстрых нейтронов  $10^{23}$  нейтр/см<sup>2</sup> может достигать нескольких десятков процентов. При значительных плотностях потока быстрых нейтронов [ $10^{15}$  –  $10^{16}$  нейтр/(см<sup>2</sup> · с)] существенным становится вклад радиационной ползучести материалов, который необходимо учитывать при анализе работоспособности твэлов быстрых реакторов. Из рис. 3.3 видно, что вклад радиационного распухания материала оболочки в общую деформацию при температурах 400–500 °С может быть весьма значительным [75].

Особенность работы сердечников из  $UO_2$ , используемых в энергетических реакторах, состоит в наличии больших радиальных градиентов температуры (см. табл. 1.2), вследствие чего в сердечнике происходит формирование структуры втулочного типа (рис. 1.14). Обычно реализуются три структурные области. В соответствии с профилем радиального распределения температуры это зоны: исходной структуры, выросших зерен практически равноосной формы и столбчатой структуры. Наличие зоны из расплавленного  $UO_2$  не допускается по условиям эксплуатации. Характер структурных изменений в топливе обоих типов реакторов аналогичен. Однако высокие тепловые нагрузки в реакторах на быстрых нейтронах (до 1000 кВт на 1 л активной зоны) вызывают большие по сравнению с ВВЭР градиенты температуры по радиусу сердечника (до  $10 \cdot 10^3$  к/см) и большие уровни абсолютной температуры, что в свою очередь интенсифицирует перестройку сердечника и уменьшает объем низкотемпературной области топлива с исходной мелкозернистой структурой. Перестройка сердечника может сопровождаться образованием или увеличением полости вдоль оси сердечника. Вследствие высоких температурных градиентов в твэлах энергетических реакторов оксидный сердечник в нестационарном режиме подвержен образованию трещин с последующим их заживлением в стационарном режиме по механизму испарение–конденсация, если линейная мощность твэлов превышает 350 Вт/см [76, 77]. Градиенты температуры по длине твэла могут вызвать массоперенос вдоль оси центральной полости.

Изменение объема топливного сердечника с учетом твердого распухания в существующих твэлах энергетических реакторов компенсируется наличием конструкционных и технологических объемов под оболочкой, обеспечивая в стационарных режимах ее полную или почти полную разгрузку от контактного давления. Из рис. 3.4, где показана зависимость объемного распухания от фактической исходной плотности материала сердечника [78], видно, что введение пористости, образующей дополнительный объем, заполняемый распухающим топливом, может служить одним из способов снижения напряжений и деформаций в оболочке до выгораний, при которых распухание меньше исходной пористости топлива. В такой ситуации анализ радиационного поведения топлива оказывается важным для выбора начального зазора и определения его изменения в процессе работы, а также изучения накопления

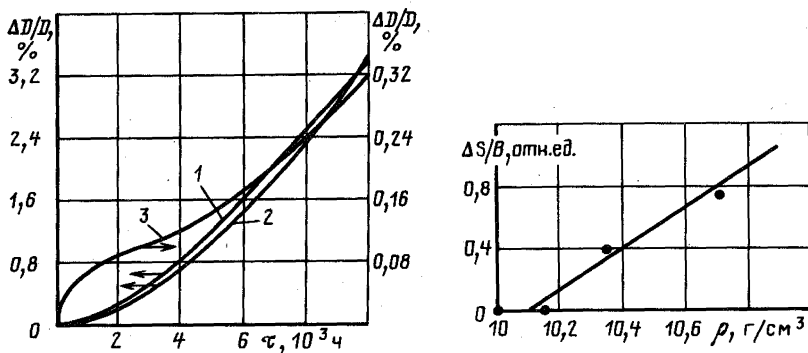


Рис. 3.3. Расчетная зависимость изменения диаметра твэла ( $\Delta D/D$ ) реактора БН-600 от времени облучения до выгорания 8,5% тяжелых атомов при исходной эффективной плотности горячего 78% теоретической:

1 – полная деформация; 2 – деформация от радиационного распухания стали; 3 – деформация от тепловой ползучести, ускоренная облучением

Рис. 3.4. Экспериментальная зависимость удельного распухания таблеток из  $UO_2$  ( $\Delta S/B$ ) от исходной плотности при линейной нагрузке на твэл 250–410 Вт/см и выгорании 4,2–6,1% тяжелых атомов ( $\Delta S \% / B$  – отношение приращения площади поперечного сечения сердечника к выгоранию)

продуктов деления, выходящих из топлива, с определением давления газа под оболочкой и теплопроводности смеси газов в зазоре, от которой зависит температурный режим топлива.

Таким образом, для прогнозирования работоспособности твэлов энергетических реакторов необходимы анализ и количественные характеристики таких процессов в топливе, как:

изменение плотности и размеров топлива из-за радиационного и термического уплотнения, распухания и термического расширения;

выделение газообразных продуктов деления и связанное с этим изменение давления и теплопроводности газовой смеси в зазоре, а также процессов поведения оболочки и твэла в целом, а именно: коррозионного поведения оболочки под действием продуктов деления и их химических соединений; коррозионного взаимодействия оболочки с теплоносителем; изменения размеров оболочки из-за термического расширения и разности давлений теплоносителя и газовой смеси; изменения ширины зазора между сердечником и оболочкой и его тепловой проводимости; термомеханического поведения твэла с учетом возможности контактного взаимодействия топлива с оболочкой в базовых и переходных режимах работы реактора.

**Изменение плотности и размеров топлива.** Изменение плотности и объема топлива при облучении определяется наряду с температурным

расширением также спеканием технологической пористости, твердым распуханием, газовым распуханием. Совместное действие этих факторов отражается в зависимости изменения плотности топлива как от выгорания, так и от температуры, и разделить их затруднительно. Причем в зависимости от температуры влияние выгорания на изменение пористости оксидного топлива может быть весьма различно, приводя к его уплотнению при низких температурах и к распуханию при высоких (рис. 3.5 [79]).

При  $t < 1200$  °С (первая структурная зона) ГПД накапливаются в прочной и хрупкой части  $UO_2$  в виде отдельных атомов и мелких пузырей и не дают заметного вклада в распухание. Более того, в этом температурном диапазоне имеет место уплотнение топлива за счет спекания пор размером несколько микрометров. Уплотнение топлива происходит при облучении и при довольно низких температурах (400–1000 °С), в то время как в отсутствие облучения оно становится заметным лишь при  $t > 1600$  °С. По данным [80] в этой структурной зоне при  $t > 900$  °С заметны межзеренные пузыри, которые растут при  $t = 1200 \div 1700$  °С (вторая структурная зона выросших зерен), вызывая интенсивное распухание топлива. При очень высоких температурах ( $t > 1700$  °С, третья структурная зона — столбчатая) число газовых пузырей на границах существенно снижается и значительная доля ГПД выходит из топлива. Заметного изменения пористости при этом не происходит. На рис. 3.6 приведены температурные зависимости изменений плотности и пористости  $UO_2$ , построенные по результатам измерений плотности сплошных и полых таблеток диаметром 14,5 мм после облучения в реакторах SGHWR (Великобритания) и Halden BWR (Норвегия) в диапазоне выгорания  $(0,09 \div 5,79) \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup> [80]. Характер зависимости изменения плотности  $UO_2$  от температуры показывает, что при невысоких температурах идет уплотнение топлива, измеренная скорость которого при  $t \leq 750$  °С составляет приблизительно 1,04% на каждые  $10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>. Максимальное уплотнение соответствует температуре центра таблеток 1000–1100 °С. При более высоких температурах скорость суммарного распухания в результате возрастания распухания от образования и накопления газообразных продуктов деления начинает преобладать над уплотнением. Причем таблетки с осевой полостью распухают сильнее сплошных из-за наличия дополнительной, свободной от нагрузок, поверхности. Измеренная зависимость отражает суммарный эффект от приращения пористости и твердого распухания  $UO_2$ . Исключение из суммарного эффекта вклада твердого распухания, скорость которого в этих экспериментах принята на основе литературных данных равной 0,43% на  $10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>, дает характер изменения пористости  $UO_2$  от температуры облучения (штриховые линии на рис. 3.6).

Что касается скорости твердого распухания, то считается, что она не зависит от температуры и линейно возрастает с увеличением выгорания



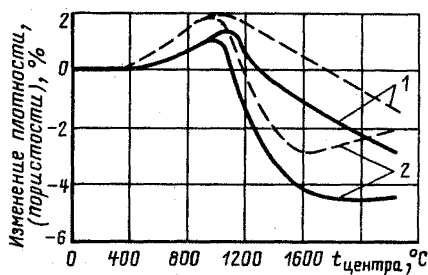
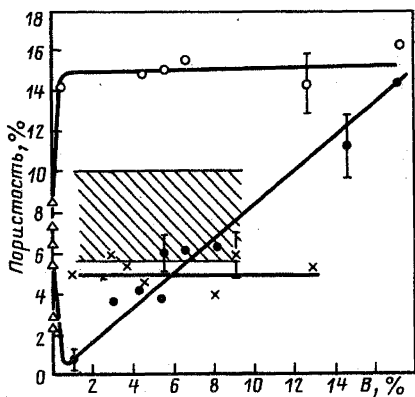


Рис. 3.5. Экспериментальная зависимость пористости облученного оксидного топлива от выгорания для различных температурных интервалов:

● —  $t_{\text{обл}} = 1000 \div 1500 \text{ } ^\circ\text{C}$ ; ○ —  $t_{\text{обл}} = 1500 \div 1700 \text{ } ^\circ\text{C}$ ,  $dt/dr < 400 \text{ } ^\circ\text{C/mm}$  (заштрихованная область —  $dt/dr > 500 \text{ } ^\circ\text{C/mm}$ ); × —  $t = 1700 \div 2500 \text{ } ^\circ\text{C}$ ; Δ — исходная пористость

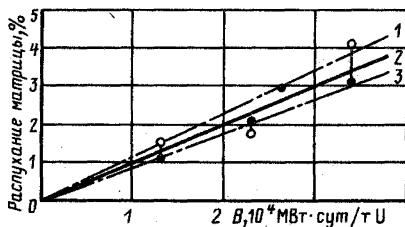
Рис. 3.6. Зависимость изменений измеренной плотности (сплошная линия) и пористости (штриховая линия) таблеток из  $\text{UO}_2$  от средней по времени облучения температуры их центра:

1 — сплошные таблетки; 2 — таблетки с осевой полостью

(рис. 3.7). Эти данные получены при исследовании твэлов, облученных в реакторе KWO (ФРГ) при тепловых нагрузках 200–400 Вт/см до выгораний приблизительно  $4,5 \cdot 10^4 \text{ МВт} \cdot \text{сут/т U}$  в диапазоне температур 1000–1300 °C [81]. В среднем распухание матрицы топлива при нагреве до температур 1300 °C составляет  $1,0 \pm 0,15\%$  на  $10^4 \text{ МВт} \cdot \text{сут/т U}$  ( $0,4 \pm 0,06\%$  на  $10^{20} \text{ дел/см}^3$ ). При повышении температуры облучения объемное распухание топлива увеличивается благодаря вкладу газового распухания. Так, при температуре облучения 1650 °C скорость объемного распухания возрастает до 2,1% на  $10^4 \text{ МВт} \cdot \text{сут/т U}$ , половина которого приходится на долю газового распухания, если считать, как это принято, что скорость твердого распухания не зависит от температуры.

Рис. 3.7. Зависимость распухания матрицы  $\text{UO}_2$  от выгорания, измеренного на краю (белые кружки) и в центре таблетки (черные кружки):

1 — распухание 0,45% на каждые  $10^{20} \text{ дел/см}^3$ ; 2 — 0,4% на каждые  $10^{20} \text{ дел/см}^3$ ; 3 — 0,35% на  $10^{20} \text{ дел/см}^3$



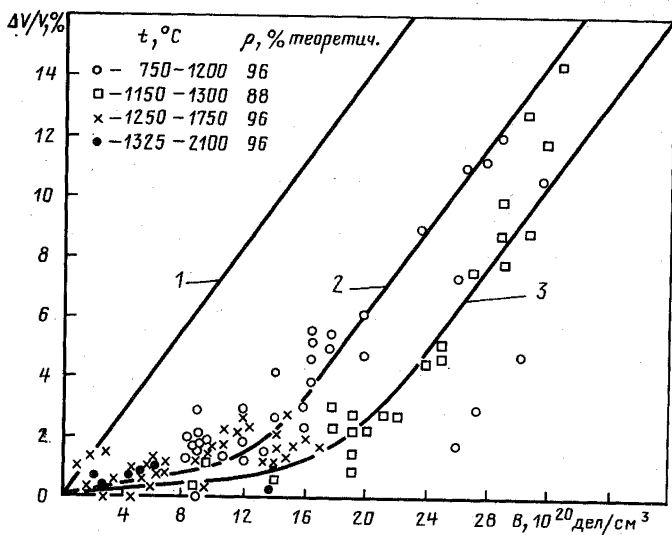


Рис. 3.8. Сравнение зависимостей твердого распухания  $\text{UO}_2$  от выгорания, полученных расчетным путем (линии) для разных значений исходной пористости  $\epsilon_0$  с экспериментальными результатами (символы) в различных диапазонах температуры облучения и плотности образцов  $\rho$  (% теоретической):

1 - 0,7% на  $10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>,  $\epsilon_0 = 0$ ; 2 -  $\epsilon_0 = 0,04$ ; 3 -  $\epsilon_0 = 0,12$

В общем случае скорость твердого распухания может изменяться в довольно широких пределах: от 1,3% на 1% выгорания тяжелых атомов для топлива теоретической плотностью до 0,2–0,3% на 1% выгорания в зависимости от доли летучих продуктов деления типа Cs, которые выходят из зерен  $\text{UO}_2$  [82]. Кроме того, на скорость твердого распухания оказывают влияние характеристики исходного топлива. Наличие объема технологических пор, способных компенсировать распухание матрицы топлива, проявляется на практике в снижении темпа твердого распухания при малых выгораниях. На рис. 3.8 [83] показана в сопоставлении с расчетными результатами экспериментальная зависимость твердого распухания топлива от выгорания, полученная измерением толщины образцов из  $\text{UO}_2$  плотностью 88 и 96% теоретической, облученных до  $B = 35 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup> в диапазоне температур 750–2100 °C. Видно, что относительно низкий темп распухания (0,05–0,08% на  $10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>) при выгорании  $(13-19) \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>, которое соответствует заполнению практически всех исходных пор распухающим топливом, возрастает до 0,7% на  $10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>.

Газовое распухание топлива однозначно связано с поведением ГПД в различных структурных зонах сердечника и динамикой их формиро-

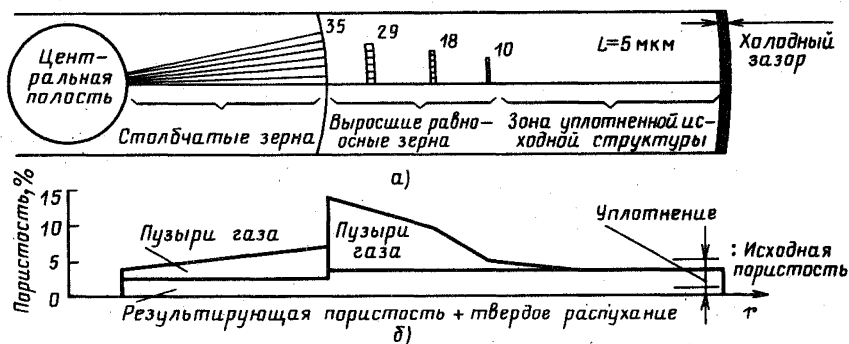


Рис. 3.9. Схема структур (а) и распределение пористости (б) по радиусу сердечника твэла (цифры на рисунке означают размер равноосных зерен)

вания при облучении. Поэтому адекватность представлений и моделей объемного изменения топлива связана, главным образом, с используемыми при этом различными гипотезами о поведении продуктов деления в топливе в процессе облучения. На рис. 3.9 схематично показаны полученные расчетным путем (хорошо согласующиеся с опытными результатами) распределения структуры  $UO_2$  и пористости по радиусу сердечника экспериментального твэла ELP-9, облученного в реакторе CEA Saclay EL-3 (Франция) [84].

Отсюда видно, что распухание сердечника в твэлах энергетических реакторов происходит в условиях сложного взаимодействия объемов распухающего топлива с сильно различными свойствами при значительных радиальных градиентах температуры и неравномерном обжати, которое снижает распухание во всем диапазоне температур (см. рис. 2.16). Необходимость учета особенностей протекания процессов в зонах разной структуры в период до и после закрытия зазора между топливом и оболочкой в условиях возможного ускорения распухания периферийной зоны под действием распухающей с большей скоростью зоны выросших равноосных зерен, а также растрескивания и последующего залечивания трещин при циклировании мощности еще больше усложняет ситуацию.

Поэтому в большинстве случаев отечественной и зарубежной практики моделирования объемных изменений в сердечниках твэлов энергетических реакторов используются упрощенные эмпирические соотношения, различные для разных структурных зон, либо суммарные скорости твердого и газового распухания в виде набора констант для разных температурных областей, получаемых для конкретных условий облучения. Так, в [79] на основе исследования образцов из  $UO_2$  и смешанного горючего  $UO_2-PuO_2$ , содержащего 15 и 20% Pu, в стальной оболочке, облученных в реакторе CM-2 до выгораний 17% тяжелых атомов

при линейных нагрузках  $q_l = 250 \div 500$  Вт/см, предложена зонная модель расчета объемных изменений сердечников твэлов. Предложенное соотношение учитывает зонный характер зависимости изменений пористости от температуры (рис. 3.5), а также количественные данные об изменении объема топлива вследствие твердого и газового распухания, и для трехзонной структуры оно имеет вид

$$\frac{\Delta V \cdot 100\%}{V} = 0,32B \left( \frac{100 - \epsilon_0}{100} \right) + \frac{4\pi}{q_l} [ (0,72B - K\epsilon_0) \int_{t_{\text{пов}}}^{1500} \lambda(t) dt + (7 - \epsilon_0) \int_{1500}^{1700} \lambda(t) dt + (5 - \epsilon_0) \int_{1700}^{t_{\text{ц}}} \lambda(t) dt ],$$

где  $B$  — выгорание, %;  $\epsilon_0$  — исходная пористость топлива, %;  $K$  — коэффициент, определяющий часть пористости  $\epsilon_0$ , которая исчезает при облучении в результате спекания;  $t_{\text{пов}}$ ,  $t_{\text{ц}}$  — температура поверхности и центра сердечника соответственно, °С;  $\lambda$  — теплопроводность топлива в данной структурной зоне.

Эта зависимость получена для сплошного сердечника, не сдерживаемого оболочкой, при давлении газа под оболочкой не более 3 МПа в диапазоне выгораний от 1 до 17%, исходной пористости  $\epsilon_0 = 2 \div 10\%$  и температуры от 1000 до 2500 °С.

В то же время при анализе влияния распухания на изменение удельного свободного объема, которое определяется заполнением всех имеющихся объемов под оболочкой (центрального отверстия, радиальных трещин, лунок и т. д.), для проектных задач часто оказывается достаточным пользоваться некоторой средней скоростью распухания, постоянной для всех структурных зон [85]. В этом случае применяются упрощенные соотношения вида

$$\Delta V/V = k_T \beta_G \tau, \quad (3.1)$$

в которых распухание считается пропорциональным выгоранию тяжелых атомов (в %) в единицу времени  $\beta_G$ , %/ч, а коэффициент пропорциональности  $k_T$  определяется опытным путем для конкретных условий облучения конкретных типов твэлов [81].

Объемное распухание диоксида урана и смешанного оксидного топлива, определенное для твэлов реакторов на быстрых нейтронах, составляет в среднем примерно 1% на 1% выгорания тяжелых атомов (рис. 3.10 [86]), а распухание диоксида плутония при нагрузках 200–250 Вт/см — до 1,5% на 1% выгорания тяжелых атомов [76]. При этом вклад твердого распухания не превышает 0,4% на 1% выгорания. Поэтому в практических расчетах обычно задают значение коэффициента пропорциональности в (3.1):  $k_T = 0,4$  до заполнения начальной пористости оксидного топлива и  $k_T = 1 \div 1,5$  после ее заполнения. Заметим, что для

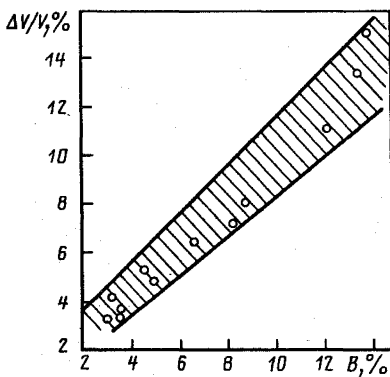


Рис. 3.10. Экспериментальная зависимость распухания оксидного горючего в цилиндрических твэлах от выгорания

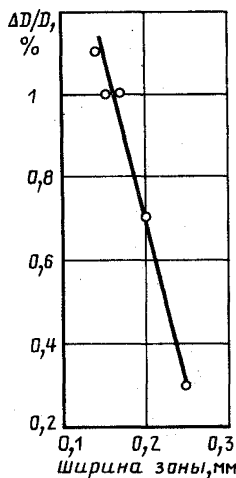


Рис. 3.11. Влияние ширины зоны с исходной структурой сердечника из  $UO_2$  на деформацию оболочки твэлов при линейной мощности твэла 470–485 Вт/см;  $t_{обл} = 550^\circ C$  и  $B = 10,3\%$  тяжелых атомов (экспериментальная зависимость)

карбидного топлива коэффициент пропорциональности  $k_T$  в линейной зависимости (3.1) колеблется в пределах 1,2–1,5 [87]. А по данным [88] распухание нитридного и карбидного топлив подчиняется не линейному закону, а параболическому.

В целях снижения распухания топливного сердечника и уменьшения радиальной деформации твэла на практике обычно реализуются следующие мероприятия: использование таблеток оптимальной исходной плотности; подбор сборочного зазора между оболочкой и сердечником; использование для заполнения свободного объема твэла достаточно чистого гелия с целью обеспечения высокой теплопроводности зазора, что способствует сохранению структуры внешнего слоя топлива и снижению деформации твэла (рис. 3.11 [89]).

Газовыделение из сердечников твэлов. Выделение газообразных продуктов деления из топлива и влияние на него различных факторов подробно анализировалось в гл. 2 (см. также [90]). Наиболее развитые из разрабатываемых моделей типов BUBL (США) [13], GRASS [91] и [92] позволяют рассчитывать газовыделение из локальных объемов топлива. Но такие программы достаточно сложны и требуют сложных вычислений, тогда как точность задания исходных данных невелика. Применительно к твэлам энергетических реакторов хорошие результаты дают диффузионные модели, скоррелированные с поведением открытой пористости в результате распухания и уплотнения топлива, как это сделано в [82]. На рис. 3.12 приведены результаты экспериментального

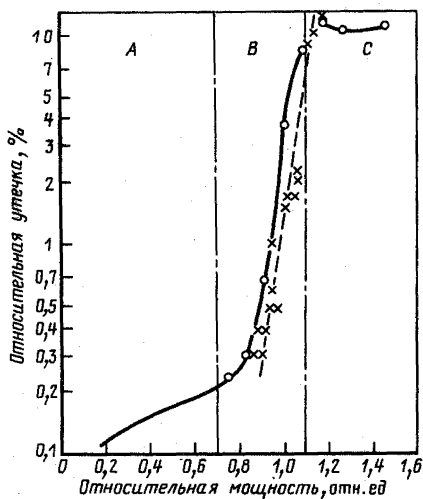
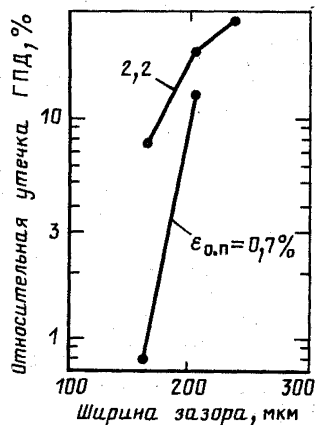


Рис. 3.12. Расчетная (точки) и экспериментальная (звездочки) зависимости газо-выделения из топливного сердечника от мощности твэла, характеризуемой температурой топлива:

зона А —  $t \leq 750$  °С; зона В —  $750$  °С  $< t \leq 1400$  °С; зона С —  $t > 1400$  °С

Рис. 3.13. Экспериментальная зависимость утечки газообразных продуктов деления из сердечника от ширины радиального зазора при разных значениях открытой пористости  $\epsilon_{0,n}$  в твэлах реактора Maine yankee (США)



изучения влияния мощности на газовыделение из оксидных сердечников твэлов, облученных в реакторе с водяным охлаждением BR3/VN (Бельгия), и дано сопоставление их с расчетными данными [84]. Рис. 3.13 из [93] иллюстрирует влияние характеристик топлива и исходного зазора между топливом и оболочкой на утечку ГПД из сердечника, которое может быть учтено с использованием расчетных методик типа [82]. В то же время данные фирмы Belgonucleaire (Бельгия) по утечке ГПД из  $UO_2$  и  $(U, Pu)O_2$  в диапазоне тепловых нагрузок до 800 Вт/см и выгораний до  $7 \cdot 10^4$  МВт · сут/т U [94], приведенные на рис. 3.14, показывают, что если обнаруживается четкая зависимость газовой выделении от линейной мощности твэла (рис. 3.14, б), то по отношению к выгоранию такой зависимости не наблюдается, высокая утечка может быть получена и при относительно небольших выгораниях (рис. 3.14, а). Последнее обстоятельство во многом затрудняет прогнозирование газовой выделении из топлива, особенно при большой глубине выгорания. Поэтому при решении простых проектных задач, в частности при оценке количества ГПД, выделяющихся под оболочку твэла в стационарных режимах, применяются инженерные модели, позволяющие эмпиричес-

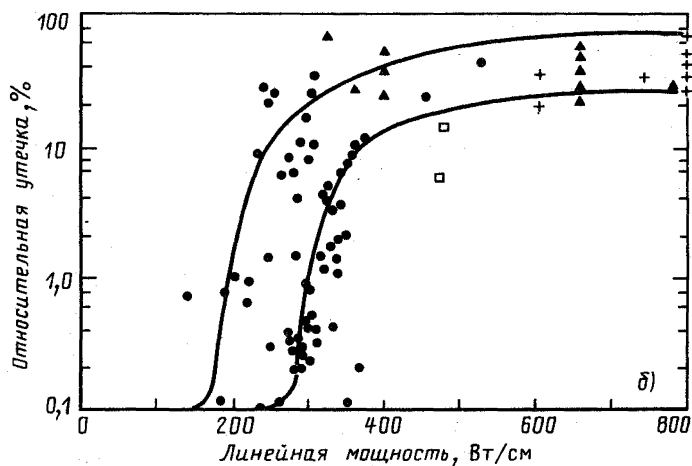
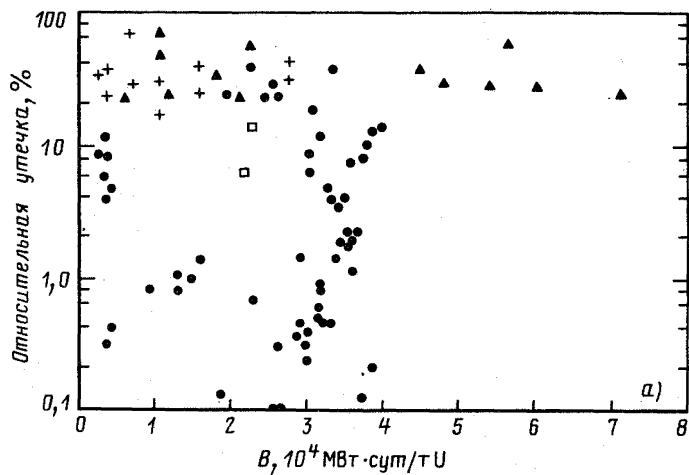


Рис. 3.14. Зависимость газовыделения из оксидного топлива от выгорания (а) и линейной мощности твэлов (б), облученных в различных реакторах:

▲ – BR2; ● – BR3 (Бельгия); □ – DODEWAARD (Нидерланды); + – DIORIT (Швейцария)

ким путем учитывать зависимость выделения ГПД от параметров облучения.

Так, в [95] для средненапряженных твэлов реактора ВВЭР-440 предложены соотношения для утечки относительно короткоживущих нуклидов ( $\lambda \geq 10^{-6} \text{ с}^{-1}$ ) из топливного сердечника:

для области низких температур ( $t < 1300^\circ\text{C}$ )

$$(R/B) + (R/B)_1 = (R/B)[1 + 2 \cdot 10^{-6}/\lambda],$$

где  $(R/B)$  — выход осколков деления за счет энергии отдачи;  $(R/B)_1$  — выход за счет knock-out-эффекта;

для области высоких температур ( $t \geq 1300^\circ\text{C}$ )

$$(R/B)_3 = \delta_2 (R/B)_2 [1 - \exp(-\lambda\tau')]/(\lambda\tau'), \quad (3.2)$$

где  $(R/B)_2$  — утечка продуктов деления из зерна в межзеренные поры, рассматривается по механизмам концентрационной или термической диффузии. Дополнительно к этому в последнем случае учитывается выход радионуклидов вследствие knock-out-эффекта  $(R/B)_1$ , а также утечка из-за миграции внутризеренных микропор. Согласно [95], в (3.2) за  $\delta_2$  принята доля топлива, прилегающего к периодически открывающимся порам, а  $\tau'$  вводится как среднее время жизни поры в закрытом состоянии, по истечении которого она раскрывается, выпуская накопленные ГПД за пределы топлива, после чего вновь закрывается. Этому процессу приписывается циклический характер.

Для решения задач проектирования твэлов часто оказывается важнее знать не газовыделение как таковое, а давление под оболочкой. В [96] приведены результаты прямого измерения давления газа в твэле под оболочкой из циркониевого сплава Н-1 в течение  $1,7 \cdot 10^4$  ч до  $B = 22$  МВт · сут/кг U. На основе рассмотрения динамики давления в твэлах выделены несколько характерных периодов его изменения и получены эмпирические зависимости давления газа под оболочкой от выгорания:

в период интенсивного роста давления при выгораниях от 3 до 8 МВтX сут/кг U

$$p = 4,0 - 1,45B + 0,15B^2;$$

при выгораниях  $B > 8$  МВт · сут/кг U в период замедления скорости его роста

$$p = 0,67 + 0,23B - 0,01B^2,$$

где  $p$  — давление газа под оболочкой, МПа. Естественно, что применение подобных соотношений обосновано для твэлов, близких к испытанным по конструкции и материалам.

При анализе газовыделения из твэлов энергетических реакторов следует помнить, что термическое поведение топлива в твэлах реакторов на быстрых и тепловых нейтронах в зависимости от выгорания существенно различается. Так, экспериментально установлено, что утечка ГПД из топлива реакторов на быстрых нейтронах систематически выше, чем из топлива реакторов на тепловых нейтронах. Это следствие различных условий работы топлива в реакторах этих типов. Распухание стальной оболочки твэлов реакторов на быстрых нейтронах может приводить



к увеличению зазора и повышению температуры топлива. Это, с одной стороны, увеличивает газовое распухание за счет МЗП (которое частично может компенсировать раскрытие зазора) и соответственно газовыделение, а с другой стороны — приводит к интенсивному росту зоны столбчатой структуры и, в конечном итоге, к увеличению газовыделения при  $B > 2 \cdot 10^4$  МВт · сут/т U [94]. Возрастание газовыделения в процессе облучения может наблюдаться и в реакторах на тепловых нейтронах с водяным охлаждением, но не обязательно при больших выгораниях. Такая ситуация в зависимости от свойств исходного топлива возможна и при выгорании около  $0,5 \cdot 10^4$  МВт · сут/т U [94]. Так, для нестабильного топлива зазор в твэлах легководных реакторов может увеличиться за счет радиационного уплотнения топлива, что также приведет к росту температуры сердечника. Если температура достаточно высока, то в результате газового распухания происходит образование взаимосвязанных каналов и газовыделение под оболочку возрастает.

Таким образом, точное предсказание утечки ГПД требует в первую очередь корректного описания поведения твэла (динамики зазора, перестройки топлива и др.) при помощи интегральных программ полномасштабного моделирования твэлов на основе экспериментального изучения протекающих в них процессов.

Для наиболее изученных твэлов реакторов на быстрых нейтронах с оксидным топливом и натриевым охлаждением экспериментальные исследования процессов газовыделения и распухания топливных композиций во время эксплуатации привели к представлениям, согласно которым оксидное топливо при  $B > 3 \cdot 10^4$  МВт · сут/т U и линейных тепловых нагрузках выше 400 Вт/см более чем на 80% освобождается от газовых осколков деления [76].

Поведение твэла в целом. На практике анализ работоспособности твэлов энергетических реакторов связан, как правило, с определением условий соблюдения некоторых заранее заданных ограничений. В качестве, например, температурных ограничений могут быть заданы: температура на внешней поверхности оболочки, определяемая ее коррозионной стойкостью в теплоносителе; температура внутренней поверхности оболочки, ограничиваемая из-за взаимодействия с продуктами деления и топливом; максимальная температура топлива, которая не должна превышать температуру плавления, определяемую с учетом влияния облучения, и т. д. Конкретные ограничения применительно к реакторам на тепловых или быстрых нейтронах могут существенно различаться. Так, в реакторе на быстрых нейтронах внутренний диаметр стальной оболочки, начиная с некоторого момента, будет увеличиваться в результате радиационного распухания стали и оболочка, если она перед этим находилась в контакте с сердечником, будет разгружаться от воздействия распухающего сердечника. В твэлах реакторов ВВЭР этого не происходит, и сердечник оказывает давление на оболочку с момента возникновения контакта между ними до конца кампании.

Важным с позиции работоспособности твэлов реактора с водяным охлаждением является требование, чтобы давление газа под оболочкой не превышало давления теплоносителя ( $p_{вн} \leq p_{нар}$ ), так как в противном случае происходит увеличение диаметра оболочки и сужение канала теплоносителя. Кроме того, при этом реализуется положительная обратная связь: увеличение радиального зазора между топливом и оболочкой приводит к росту температуры топлива, а следовательно, выхода ГПД и еще большему развитию давления газов под оболочкой. Ограничение работоспособности твэлов этого типа связано также с коррозионным воздействием иода и цезия на циркониевую оболочку, которое проявляется при наличии растягивающих напряжений в оболочке и становится критичным при переходных режимах. Для компенсации объемных изменений топлива удельный свободный объем под оболочкой должен существовать в течение всего периода работы твэла в реакторе. В твэлах реакторов на быстрых нейтронах, наряду с газовым давлением, силовое нагружение оболочки вызывается распухающим топливом при его контакте с оболочкой. При высоких линейных мощностях это нагружение создается в основном внешним прочным слоем топлива толщиной 0,15–0,2 мм, если его температура не превышает 930–950 °С (рис. 3.11). С увеличением температуры оксидное топливо разупрочняется и деформируется в направлении центрального отверстия.

Прочностные аспекты работоспособности оболочек твэлов энергетических реакторов изучены достаточно подробно. Обзор работ по моделированию работоспособности оболочек и твэлов дается в [97]. Дополнительно к этому представляют интерес аналитические методы исследования напряженно-деформированного состояния твэлов энергетических реакторов, которые в ряде случаев позволяют получать явные взаимные зависимости различных параметров и их влияние на работоспособность. Так, в [98] при условии линейной зависимости деформации от напряжений в диапазоне рабочих температур оболочек твэлов реакторов ВВЭР, а также оболочек из аустенитных сталей в твэлах реакторов на быстрых нейтронах до температур 650 °С, когда радиационная составляющая ползучести превышает термическую, получены критериальные соотношения для предварительного выбора проектных параметров твэлов. В частности, для обеспечения условия отсутствия растягивающих напряжений в оболочке введено ограничение на давление ГПД под оболочкой

$$p_{г}^{\max} \leq p'_{тн} - 2\dot{S}_{т} / (3\Omega_{т}\mathcal{J}),$$

где  $p'_{тн}$  — разность между давлением теплоносителя и давлением гелия, первоначально заполняющего твэл;  $\dot{S}_{т}$  — скорость объемного распухания топливного сердечника;  $\Omega_{т}$  — модуль ползучести топлива;  $\mathcal{J}$  — геометрический параметр, характеризуемый соотношением размеров центрального отверстия и наружной поверхности таблетки.

Что касается вопросов коррозионной стойкости оболочек твэлов энергетических реакторов, надо отметить, что механическое и коррозионное их поведение определяется, главным образом, рабочими параметрами реактора (температурой, давлением теплоносителя, тепловыми нагрузками и т. д.), а также содержанием примесей в теплоносителе. Использующийся сплав Н-1 по комплексу механических, коррозионно-химических свойств и склонности к наводороживанию удовлетворяет требованиям, предъявляемым к материалам оболочек твэлов действующих и строящихся энергетических водо-водяных и водографитовых реакторов [99].

В твэлах реакторов на быстрых нейтронах коррозионное взаимодействие между оксидным топливом и оболочкой может явиться одним из факторов, ограничивающих их работоспособность. Основная роль в этом взаимодействии приписывается осколкам деления, таким, как Cs, I, Te, и изменению кислородного потенциала на границе раздела топливо—оболочка. Наблюдаемое взаимодействие продуктов деления с оболочкой и топливом обычно локализуется в наиболее горячих участках оболочки [72]. Толщина слоя взаимодействия зависит от температуры и выгорания. При этом различают два типа взаимодействия: межкристаллитная коррозия стали с проникновением топлива в оболочку и образование коррозионной пленки на внутренней поверхности оболочки. Считается, что углерод, являясь переносчиком кислорода, усугубляет процесс взаимодействия за счет увеличения кислородного потенциала на границе раздела топливо—оболочка. Опыт, накопленный при эксплуатации твэлов с  $UO_2$ , показывает, что коррозия не препятствует достижению выгораний 10–11% при толщине оболочки 0,3–0,4 мм и температуре  $700^\circ C$  [75]. Для достижения более глубоких выгораний необходимо изыскивать пути ограничения коррозионного взаимодействия, которое особенно проявляется в случае уран-плутониевого оксидного топлива [100].

### 3.3. Высокотемпературные оболочечные твэлы

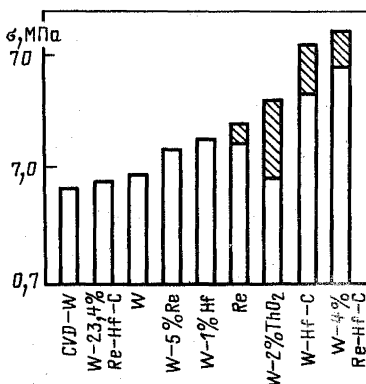
Материалы оболочек и топливо высокотемпературных твэлов. Улучшение удельных массовых характеристик автономных ядерных энергетических установок, особенно космического назначения, связано с повышением температурного уровня и напряженности твэлов реакторов таких установок. Эти особенности проявляются независимо от способа преобразования тепла ядерного реактора в электричество. Для установок с машинным преобразованием тепла в электрическую энергию или для установок с термоэлектрическими генераторами, в которых реактор как источник тепла отделен от системы преобразования, в связи с чем необходима система передачи высокотемпературного тепла от реактора к преобразователю, температура теплоносителя в реакторе и, следовательно, твэла ограничена допустимыми температурами системы

транспорта тепла или преобразователя. Считается [101], что температура теплоносителя на выходе из реактора может достигать 1320 К при использовании в качестве теплоносителя натрия и 1520 К для лития. При этом температура внутренней поверхности оболочки твэла и наружной поверхности топлива равна соответственно 1350 К/1550 К для натрия и 1600 К/1800 К для лития. Для термоэмиссионных преобразователей закономерности процесса термоэлектронной эмиссии требуют более высоких температур, что может быть реализовано при совмещении источника тепла и преобразователя.

Выполнение традиционных требований по герметичности и геометрической стабильности твэлов в условиях таких высоких температур привело к необходимости разработки и применения новых высокотемпературных оболочечных материалов и топливных композиций. Для термоэмиссионных преобразователей встроенного типа выбор оболочечных материалов усложняется дополнительным требованием к эмиссионным свойствам материала, а требование к геометрической стабильности становится более жестким, чем в твэлах энергетических реакторов, поскольку этим определяются стабильность межэлектродного зазора и выходные электрические параметры преобразователя.

В качестве материала оболочек твэлов высокотемпературных реакторов с температурой оболочки твэла 1500 К и выше в [102] рассматриваются сплавы молибдена и вольфрама, обладающие высокой прочностью при повышенных температурах, совместимостью с топливом и относительно низким сечением поглощения нейтронов (для вольфрама при использовании изотопа  $^{184}\text{W}$ ). Среди молибденовых сплавов, обладающих удовлетворительной прочностью и стабильностью, рассматриваются чистый молибден, TZM (Mo – 0,5% Ti – 0,08% Zr) и Mo – (4 ÷ 50)% Re. TZM и чистый молибден из-за перехода в хрупкое состояние при комнатной температуре требуют при их применении специальных технологических мероприятий. Предпочтительным среди других сплавов является молибденовый сплав с рением (Mo – 13% Re), который обладает низкой температурой перехода в хрупкое состояние. Однако его применение ухудшает нейтронно-физические параметры реактора из-за высокого сечения поглощения нейтронов рением. При использовании молибдена и его сплавов в качестве оболочек твэлов термоэмиссионных преобразователей для улучшения эмиссионных характеристик могут наноситься покрытия из вольфрама. Среди вольфрамовых сплавов рассматривается применение чистого вольфрама и сплавов: W – 25% Re, W – 4% Re и W – 2% ThO<sub>2</sub>. Основные преимущества вольфрама и его сплавов – более высокие прочностные характеристики, хорошая совместимость с топливом и теплоносителем при высоких температурах, а также лучшие, чем у молибденовых сплавов, эмиссионные свойства. На рис. 3.15 показаны сопротивления ползучести различных вольфрамовых сплавов [103]. Вольфрам, используемый в качестве материала эмиттера, получают разложением из газо-

Рис. 3.15. Напряжение, вызывающее деформацию ползучести различных вольфрамовых сплавов, равную 1% за пять лет при температуре 1900 К (области неопределенности заштрихованы)



вой фазы в два этапа [74]. На первом этапе применяется водородное восстановление  $WF_6$  для осаждения вольфрама на горячую молибденовую подложку с получением мелкозернистой столбчатой структуры. На втором этапе на первый слой вольфрама осаждается второй толщиной около 0,3 мм водородным восстановлением хлорида вольфрама.

Режим осаждения обеспечивает преимущественную кристаллографическую ориентацию  $\langle 110 \rangle$  с эффективной работой выхода около 5 эВ.

При выборе материалов оболочек твэлов высокотемпературных реакторов весьма существенным является их совместимость с керамическим топливом  $UO_2$ , UC, UN. В [101] приведены результаты исследований совместимости топлива со сплавами ниобия, в том числе Nb – 1% Zr, молибдена (Mo – Re) и тантала, в том числе T-111 (Ta – 8% W – 2% Hf) и Astar 811C (Ta – 8% W – 1% Hf – 0,7% Re – 0,025% C). Исследования проводились с учетом комплексного взаимодействия топлива с теплоносителем при нарушении герметичности оболочек. В качестве топлива рассматривались соединения урана ( $UO_2$ , UC и UN) стехиометрического состава. При рабочих температурах диоксид и карбид урана находились в однофазном состоянии и имели значительную область гомогенности. В карбидном и нитридном топливах наблюдались заметные количества примесей кислорода. Небольшие отклонения от стехиометрии в составе топлива приводили к образованию второй фазы. Химическая активность оказалась чувствительной к содержанию примесей и стехиометрическому составу топлива, в том числе и к его изменению с выгоранием. Так, топливо, содержащее свободный уран, оказалось несовместимым ни с какой оболочкой при температуре выше температуры плавления урана. Основные результаты, полученные в этих исследованиях, сводятся к следующему.

Диоксид урана, состав которого близок стехиометрическому ( $2,000 \leq O/U \leq 2,003$ ), слабо взаимодействует (глубина взаимодействия менее 25 мкм) с молибденовыми (время контакта до 10 000 ч) и ниобиевыми (время контакта 5600 ч) сплавами. При температуре  $T \leq 1700$  К такие же результаты показали испытания диоксида урана с танталовыми сплавами в течение 100 ч. Не отмечено также влияние нейтронного облучения на это взаимодействие.

Близкие по составу к стехиометрическому карбид и нитрид урана обнаружили при испытаниях в течение 100 ч тенденцию к взаимодействию с ниобиевыми и танталовыми сплавами при температуре начиная с 1650 К, причем взаимодействие заметнее для карбида. Отмечено относительно слабое взаимодействие молибдена с карбидным и нитридным топливами при температуре 1500 К (для нитрида урана оно более заметно).

Эффективным барьером, предотвращающим взаимодействие нитридного топлива с ниобиевой и танталовой оболочками, является покрытие из вольфрама толщиной 25–125 мкм.

Химическое взаимодействие топлива с оболочкой становится значительным при существенном отклонении топлива от стехиометрии.

Наилучшими показателями совместимости для всех видов топлива обладают вольфрам и молибден-ренийевые (Mo – 13% Re) сплавы, а худшими – танталовые. Наиболее сильное взаимодействие отмечается для карбидного топлива.

С целью выявления особенностей поведения высокотемпературного топлива, его совместимости с оболочкой, определения деформации оболочки, ее герметичности, влияния на эти процессы температуры и выгорания, полезных для решения проблемы эмиттерного узла электрогенерирующего элемента (ЭГЭ), были выполнены реакторные испытания высокотемпературных стержневых твэлов с различными комбинациями топлива и материала оболочки [104]. Температура при испытаниях варьировалась в пределах 1100–2200 К, а глубина выгорания до 5%. Условия испытаний более трехсот образцов твэлов с топливом из UC, UN и UO<sub>2</sub> показаны на рис. 3.16. Там же отмечены образцы, имевшие при внешнем осмотре после облучения нарушения оболочки. Результаты испытаний также суммированы в табл. 3.1.

При испытаниях не было зафиксировано повреждений твэлов с оксидным топливом (плотностью 85–90% теоретической) при выгорании до 6%. Деформация оболочки (увеличение диаметра твэла) составила 1,4–12% для твэлов с оболочкой из сплава W – 26% Re при температуре испытаний 1500–2200 К и не более 1% для твэлов с оболочками из сплавов Nb – 1% Zr и T-111, температура испытаний которых не превышала 1250 К.

Твэлы с нитридным топливом и оболочками из сплавов ниобия и тантала с диффузионным подслоем вольфрама показали положительные результаты при температурах испытаний 1200–1550 К и выгораниях до 2,5%, а в отдельных случаях и до 4%. При температурах испытаний выше 1600 К более половины твэлов с нитридным топливом вышли из строя вследствие сильного распухания топлива предположительно из-за его высокой плотности. Оболочки из вольфрамового сплава при высокой температуре показали высокую жолзучесть, их деформация  $\Delta D/D$  составила в этих условиях 5–10%.

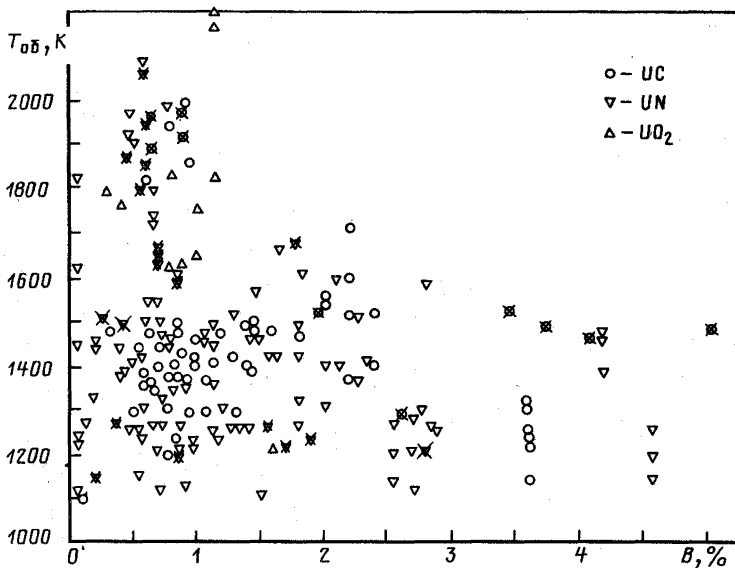


Рис. 3.16. Условия облучения образцов высокотемпературных твэлов с различным топливом (крестиком отмечены образцы, имевшие повреждения)

Таблица 3.1. Результаты реакторных испытаний высокотемпературных твэлов

Материал оболочки	Вид топлива		
	UC	UN	UO <sub>2</sub>
W - 26% Re	14 (8) *	33 (14)	13
W	-	2	2
T-111 (Ta - 8% W - 2% Hf):			
с диффузионным барьером	-	43 (14)	-
без диффузионного барьера	-	14 (1)	-
TZM (Mo - 0,5% Ti - 0,09% Zr - 0,03% C) без диффузионного барьера	-	6	-
Ниобиевые сплавы:			34
с диффузионным барьером	47	35	-
без диффузионного барьера	13 (2)	15	-
PWC-11 (Nb - 1% Zr - 0,1% C) с диффузионным барьером	-	47 (3)	-
Нержавеющие стали аустенитного класса	-	6	-
<b>Итого</b>	<b>74 (10)</b>	<b>201 (32)</b>	<b>49</b>

\* В скобках показано число поврежденных твэлов.

Твэлы на основе карбидного топлива также выходили из строя в основном при температурах испытания выше 1600 К. В этих случаях деформация оболочки из сплава W — 26% Re составила 16–28%. Лучшие результаты наблюдались у карбидных твэлов с оболочками из сплавов на основе ниобия, с диффузионным барьером из вольфрама, испытанных при пониженных температурах.

**Особенности работы твэлов в термоэмиссионном реакторе.** Термоэмиссионное преобразование тепла ядерного реактора в электричество рассматривается как один из перспективных способов получения энергии для автономных источников, и в частности для космических энергетических установок.

Особенности процесса термоэлектронной эмиссии обуславливают высокий уровень рабочих температур термоэмиссионных преобразователей (ТЭП). Считается, что приемлемые для энергетических установок параметры, такие, как удельная мощность и КПД, могут быть получены при температуре эмиттера выше 1300–1400 °С. Такая высокая температура рабочего процесса, создавая определенные проблемы реализации ТЭП, обеспечивает преимущество космическим энергетическим установкам с ТЭП, уменьшая площадь холодильника-излучателя благодаря высокой температуре отводимого тепла. Хотя и рассматриваются ядерные энергетические установки, в которых высокотемпературное тепло транспортируется из реактора к ТЭП с помощью циркулирующего теплоносителя или с использованием тепловых труб, одной из основных схем является расположение ТЭП в активной зоне реактора, так что в ядерном реакторе сочетаются процессы генерации тепла и его преобразования в электричество. В этом случае ядерное горючее располагается в непосредственном контакте с эмиттером термоэмиссионного преобразователя и твэл становится одновременно эмиттерным узлом ТЭП.

Рассматриваются различные схемы электрогенерирующих каналов. Для термоэмиссионного преобразователя характерно низкое напряжение одиночного элемента. Стремление к снижению потерь на сопротивление при высоких удельных электрических мощностях привело к разработке многоэлементных электрогенерирующих каналов (ЭГК) гирляндного типа с последовательно соединенными для увеличения выходного электрического напряжения ЭГЭ. Схематически продольное сечение ЭГЭ фирмы Gulf General Atomic (США) [105] показано на рис. 3.17. Он состоит из эмиттера с заключенным в нем тепловыделяющим сердечником, эмиттер окружен коллектором, зазор между электродами заполнен парами цезия. На рис. 3.18 приведены возможные принципиальные конструкционные схемы эмиттерного узла такого ЭГЭ. Вдоль оси ЭГК набирается в данном случае шесть последовательно соединенных элементов. Непреобразованное тепло отводится теплоносителем, омывающим металлическую несущую оболочку, внутри которой расположены соединенные последовательно ЭГЭ, отделенные от оболочки слоем электрической изоляции. В диапазоне небольших удельных



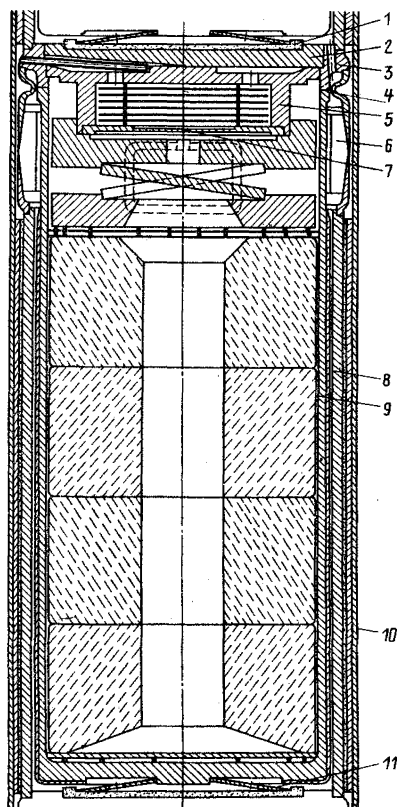


Рис. 3.17. Конструкция модуля термоэмиссионного преобразователя:

1 — центрирующий керамический элемент ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ); 2 — крышка эмиттера (Ta); 3 — переходник (Ta); 4 — шов диффузионной сварки (Ta-W); 5 — герметичный узел полости топлива с устройством для вывода ГПД и улавливания пара топлива; 6 — металлокерамическое уплотнение ( $\text{Nb}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{Nb}$ ); 7 — легкоплавкая пробка (Cu); 8 — трехслойный анодный узел ( $\text{Nb}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{Nb}$ ); 9 — двухслойный эмиттер (W); 10 — несущая оболочка ( $\text{Nb}-1\% \text{ Zr}$ ); 11 — центрирующая пружина (W-25% Re)

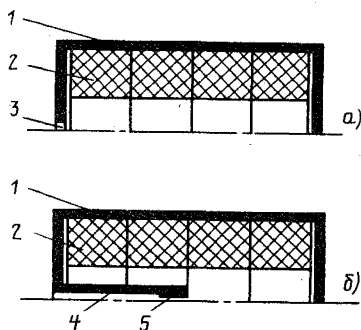


Рис. 3.18. Варианты конструкционного оформления эмиттерного узла (твэла) модуля многоэлементного ЭГК без газоотводного устройства (ГОУ) (а) и с ГОУ (б):

1 — оболочка (эмиттер); 2 — топливный сердечник; 3 — отверстие для вывода ГПД; 4 — трубка ГОУ; 5 — капилляр

электрических мощностей возможно применение одноэлементных конструкций ЭГК протяженностью ЭГЭ на всю высоту активной зоны реактора-преобразователя [106], как показано на рис. 3.19.

ЭГЭ, предназначенный в отличие от традиционного твэла не только для генерации тепла, но и для преобразования его в электричество, содержит ряд новых функциональных узлов и образующих их материалов. В качестве примера для одной из схем ЭГЭ в табл. 3.2 показано назначение основных узлов и материалов [107].

Наличие в активной зоне реактора-преобразователя электрогенерирующих элементов, в которых значительные объемы занимают эмит-

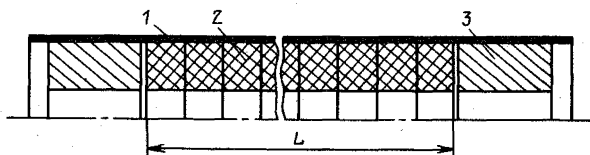


Рис. 3.19. Принципиальная схема эмиттерного узла одноэлементного ЭГК:

1 – оболочка (эмиттер); 2 – топливный сердечник; 3 – торцевые вставки (отражатель); L – длина активной части твэла

Таблица 3.2. Назначение основных узлов и материалы термоэмиссионного ЭГЭ

Узел	Материал	Назначение	
		Основное	Дополнительное
Топливо Эмиттер	UO <sub>2</sub>	Источник тепла	Передача тепла к эмиттеру
	W	Эмиссия электронов	Оболочка топлива, проводник тока
Коллектор	Nb	Сборник электронов	Проводник тока
Изоляционное уплотнение	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Герметизация межэлектродного зазора	Электрическая изоляция между эмиттером и коллектором
Изоляционный чехол	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Электрическая изоляция ЭГЭ от несущей конструкции	Проводник тепла
Несущая оболочка	Nb – 1% Zr	Поверхность теплоотдачи	Несущая конструкция ЭГК

тер, коллектор, электрическая коммутация, изоляция, межэлектродный зазор и другие компоненты, неблагоприятно влияет на баланс реактивности. Поэтому для компенсации этого отрицательного эффекта оказывается необходимым использовать топливо повышенной плотности по делящемуся изотопу. Реализация этого требования усложняет проблему компенсации распухания топлива путем выделения свободных объемов, как это делается в твэлах энергетических реакторов. В качестве топлива твэлов ЭГК встроенного типа, как правило, используется диоксид урана высокой плотности (более 95% теоретической) с обогащением свыше 90% <sup>235</sup>U. Рассматривается применение металло-керамических (W + UO<sub>2</sub>) [108] и карбидных (90% UC – 10% ZrC) [105, 109] композиций. Проблема предотвращения взаимодействий топлива и оболочки в твэлах ЭГК решается использованием диоксида урана почти стехиометрического состава (2,000 ≤ U/O ≤ 2,003) и тугоплавких жаропрочных материалов.

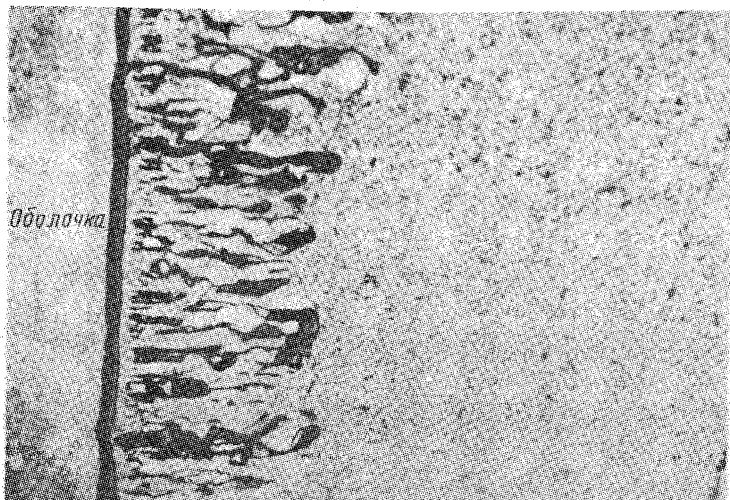


Рис. 3.20. Структура  $\text{UO}_2$ , облученного в оболочке из тугоплавкого металла при  $t_{\text{об}} = 1550^\circ\text{C}$  и градиенте  $200^\circ\text{C}/\text{см}$  до  $B = 10^{20}$  дел/ $\text{см}^3$  (исходная плотность  $\text{UO}_2$  более 95% теоретической, исходный размер зерна 10 мкм) [110]

В отличие от твэлов энергетических реакторов, в твэлах ЭГК высокая температура поверхности топлива при использовании диоксида урана ( $\text{UO}_2$ ) приводит к тому, что на периферии сердечника вместо исходной структуры (первая зона) за счет испарения  $\text{UO}_2$  с поверхности таблеток и конденсации ее на внутренней поверхности оболочки образуется зона столбчатых зерен (зона переконденсации). Граница между зоной конденсации и остальным топливом, в том случае если исходный технологический зазор достаточно велик, просматривается четко (рис. 3.20), а иногда может представлять собой даже кольцевой зазор. В случае если в горячем состоянии топливо и оболочка находятся достаточно близко, зазор вырождается в систему отдельных полостей, массоперенос при этом происходит неравномерно и граница переконденсированного слоя обозначается только изменением структуры в сплошном теле. Если температура поверхности и время работы достаточно велики, то может исчезнуть и вторая зона (выросших равноосных зерен), при этом зона переконденсации и зона удлиненных зерен, сливаясь, образуют сплошную зону столбчатых зерен (рис. 3.21). В твэлах ЭГК в связи с малым перепадом температуры границы зон выявляются менее четко, нежели в твэлах энергетических реакторов, что дает возможность более детально изучать структуру топлива в привязке к определенному уровню температуры (структура, соответствующая одной температуре, как бы растянута в пространстве). Кроме того, топливо в твэлах ЭГК, ра-

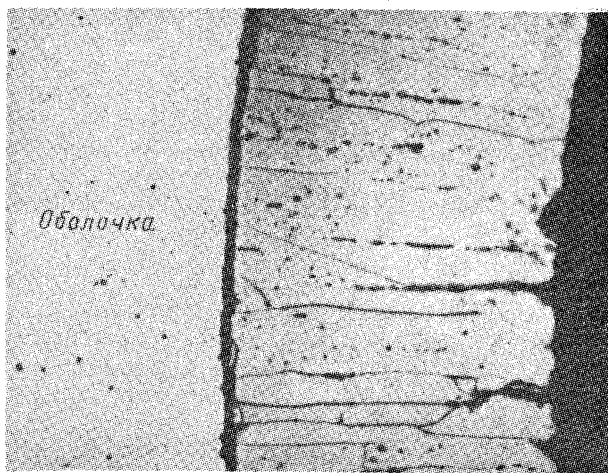


Рис. 3.21. Структура  $UO_2$ , облученного в твэле ЭГК ( $t_{об} = 1840^\circ C$ , исходная плотность  $UO_2$  равна 97% теоретической, плотность после облучения – 95% теоретической) [111]

ботающих при малых градиентах температуры и в стабильном малоцикловом режиме, имеет существенно меньшее количество трещин.

Как показано в [107], наряду с распуханием топлива ограничение ресурсоспособности ЭГЭ может быть обусловлено радиационным распуханием электроизоляторов из оксида алюминия под действием быстрых нейтронов. Результаты таких испытаний представлены на рис. 3.22, где дана зависимость изменения объема изолятора от флюенса быстрых нейтронов с энергией  $E > 0,1$  МэВ. Так как считается, что потеря герметичности керамики наступает при распухании более 3%, то это условие может быть использовано для определения ресурса ЭГЭ. Для проекта термоэмиссионного реактора-преобразователя на быстрых нейтронах по программе SP-100 (США) это ограничение, обусловленное радиационной стойкостью изоляторов на основе оксида алюминия, составляет три года. Значительно лучшую радиационную стойкость показывают изоляторы на основе  $Y_2O_3$ ,  $Y_3Al_5O_{12}$ ,  $Si_3N_4$ ,  $Si_2ON_2$ , результаты радиационных испытаний которых также даны на рис. 3.22.

**Газовыделение из топлива и деформация оболочки.** Из-за меньшего по сравнению с твэлами энергетических реакторов радиального перепада температуры в сердечнике с умеренным абсолютным уровнем рабочей температуры топлива (до  $1700^\circ C$ ) зона выросших равноосных зерен, дающая определяющий вклад в распухание, может занимать весьма значительную долю в объеме таблетки (рис. 3.20), в связи с чем проблема газового распухания сердечника из  $UO_2$  и обусловленная этим диамет-

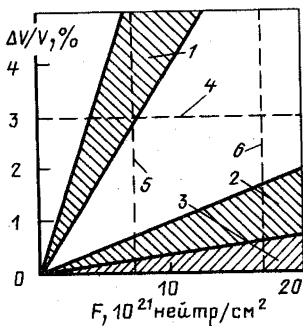


Рис. 3.22. Зависимость распухания изоляционных материалов от флюенса быстрых нейтронов:

1 – мелкозернистая  $Al_2O_3$ ; 2 –  $Y_2O_3$ ,  $Si_3N_4$ ; 3 –  $Y_3Al_5O_{12}$ ,  $Si_2ON_2$ ; 4 – предельно допустимое распухание электроизоляторов; 5 – флюенс через три года эксплуатации; 6 – флюенс через семь лет эксплуатации

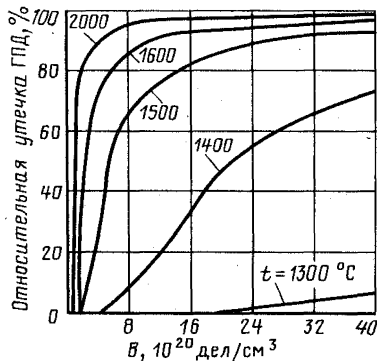


Рис. 3.23. Расчетная зависимость относительной утечки ГПД из  $UO_2$  от выгорания при различных температурах топлива (градиент температуры в топливе  $\Delta T/\Delta x \leq 1000$  °C/см, гидростатическое давление  $p_T = 13,7$  МПа)

ральная деформация оболочки становится центральной в обеспечении работоспособности твэлов данного типа.

В общем случае деформация оболочки может происходить в результате действия следующих механизмов: нагружения внутренним давлением выделяющихся ГПД, термического хруповика, распухания топлива.

На рис. 3.23 [112] приведены значения относительного выхода ГПД из  $UO_2$  в зависимости от локальной температуры и выгорания топлива. Воспользовавшись этими данными, можно определить количество газообразных продуктов деления, выходящих из топлива. Оценки показывают, что для твэла ЭГК (рис. 3.24) [74], температура оболочки которого 1900 К, при  $B = 3 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>, времени работы около 1 года, при объеме пустот примерно 20% давление ГПД внутри оболочки при ее герметичности составит  $10^4$  кПа. Температура оболочки такова, что даже тугоплавкие материалы не способны по прочностным свойствам удерживать такое давление, в результате чего может возникнуть недопустимая радиальная деформация оболочки. Предотвращение подобной ситуации потребует специальных конструкционных или технологических решений либо снижения уровня рабочих температур. Осевая и радиальная неравномерности температуры по сердечнику вызывают массоперенос топлива (особенно при использовании  $UO_2$ ), который стремится образовать центральную полость с изотермической поверхностью. При этом может произойти перекрытие вентиляционных каналов, что

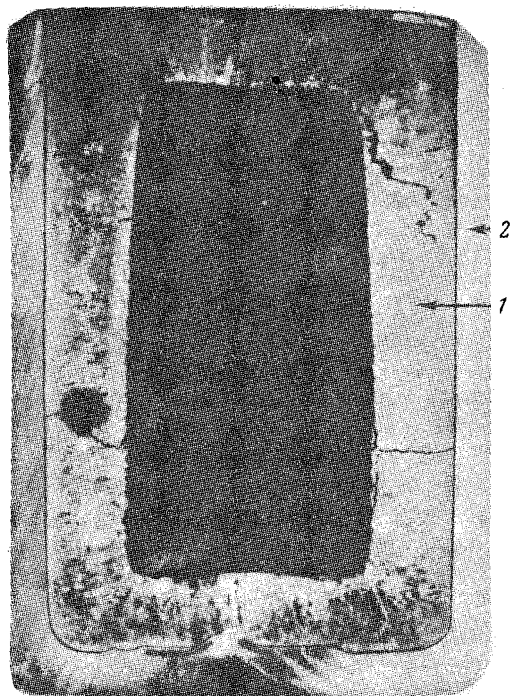


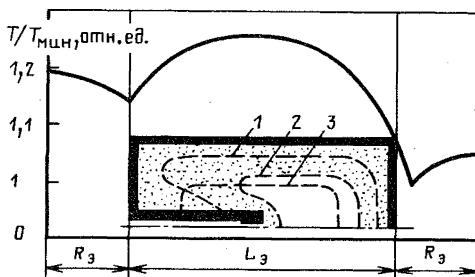
Рис. 3.24. Продольное сечение топливного сердечника из  $\text{UO}_2$  (1) с вольфрамовым эмиттером (2) (диаметр которого 15,9, толщина 1,27, длина 25,4 мм), облученного при  $T_{\text{об}} = 1900 \text{ К}$  до  $B = 3 \cdot 10^{20} \text{ дел/см}^3$  в течение 9875 ч

приведет к накоплению газа в полости и деформации оболочки под действием его давления. Поэтому в конструкциях твэлов ЭГК с разгруженной от внутреннего давления выходящих из топлива ГПД оболочкой должны предусматриваться специальные меры для обеспечения надежного вентилирования центральной полости сердечника. Для твэла одноэлементного ЭГК с относительно невысокой удельной мощностью может использоваться сквозное центральное отверстие (рис. 3.19). В этом случае давление не увеличивается, если только в результате осевого массопереноса топлива в вентиляционном канале и деформации топлива из-за распухания не происходит полного перекрытия его сечения в процессе работы реактора и образования центральной замкнутой полости, как показано на рис. 3.24.

Одним из возможных путей решения проблемы вывода ГПД из центральной замкнутой полости является введение специального газоотводного устройства (ГОУ), состоящего из капилляра на конце, расположенном в центральной полости, и участка с увеличенным проходным сечением на другом конце (рис. 3.18, б). Размер капилляра выбирается из условия ограничения потока пара  $\text{UO}_2$ , но достаточным для отвода ГПД. Увеличение проходного сечения трубки ГОУ после капил-

Рис. 3.25. Поле температур оболочки (сплошная линия) и топливного сердечника (штриховые линии):

1 — изотерма с  $T/T_{\text{мин}} = 1,56$ ; 2 — изотерма с  $T/T_{\text{мин}} = 1,77$  является границей газовой полости; 3 — положение границы газовой полости без ГОУ;  $L_3$  и  $R_3$  — соответственно длина и радиус эмиттера



ляра предотвращает полную закупорку ее сечения вследствие возможной конденсации пара  $\text{UO}_2$ , частично проникающего через капилляр. Для исключения конденсации пара  $\text{UO}_2$  на капилляре последний должен помещаться строго в зоне испарения топлива, что требует корректного анализа полей температур в топливе и ГОУ в условиях аксиального и радиального массопереноса и реальных режимов эксплуатации.

На рис. 3.25 в качестве примера показано поле температур топливного сердечника одного элемента многоэлементного ЭГК с ГОУ [113]. Хотя принципиальные вопросы функционирования ГОУ кажутся ясными, создание надежного вентиляционного устройства на большие ресурсы остается сложной научно-технической задачей, связанной с оптимизацией геометрии ГОУ, его положением в центральном канале и разработкой моделей поведения топлива в процессе эксплуатации.

Второй из рассматриваемых механизмов деформации оболочки — термический хрупкий [103] — вызывается различием температурных коэффициентов объемного расширения топлива и оболочки и переконденсацией топлива на оболочку в процессе циклирования мощности. В твэлах ЭГК из-за высоких рабочих температур поверхности топлива уже в первые десятки или сотни часов работы реактора исходный зазор оказывается полностью перекрытым конденсатом и оболочка работает в условиях контакта с сердечником. Повышение мощности реактора после периода стационарной работы приводит к соответствующему повышению температуры сердечника и оболочки. Из-за более высокого коэффициента температурного расширения  $\text{UO}_2$  по сравнению с оболочкой из тугоплавкого металла происходит деформация последней, в том числе и неупругая.

При возврате к прежнему режиму мощности за счет разности температурных коэффициентов объемного расширения топлива и оболочки и относительно слабого их сцепления или прочности топлива происходит образование зазора, который в следующий период стационарной работы снова заполняется конденсатом топлива. Неоднократное циклирование мощности будет приводить в соответствии с указанным механизмом к постоянному накоплению радиальной деформации оболочки.

Наиболее серьезная причина геометрической нестабильности твэла связана с накоплением в топливе ГПД и соответствующим распуханием материала сердечника. Распухание топлива под действием твердых и газообразных продуктов деления приводит к увеличению объема топлива, вызывая наружную деформацию оболочки, если отсутствуют свободные объемы, а при их наличии — если сопротивление ползучести топливного сердечника превышает сопротивление ползучести оболочки. Заметим, что зазор между сердечником и оболочкой, в отличие от твэлов энергетических реакторов, не является компенсирующим объемом, так как быстро заполняется конденсатом.

Твердое распухание при выгорании менее 1% незначительно по сравнению с газовым и принимается, также как и в энергетических реакторах, постоянным, обычно не превышающим 0,4–0,5% на 1% выгорания тяжелых атомов.

По радиационно-активируемому распуханию  $UO_2$  имеется довольно много экспериментальных данных [6, 19, 45, 47–49, 88, 114]. Однако их использование для оценки работоспособности твэлов ЭГК в условиях газового распухания топлива сопряжено с трудностями, обусловленными существенными отличиями условий облучения в экспериментах от натуральных режимов эксплуатации. Так, экспериментальные данные по распуханию ампул с  $UO_2$  в [19, 88] получены в условиях герметичности ампул или плохо контролируемого вывода ГПД из них, а также при наличии термоциклирования. Поэтому увеличение внешнего диаметра ампул в этих экспериментах обусловлено не только распуханием топлива, но и термическим хрупковиком, и эффектом развития внутреннего давления под оболочкой.

Аналогичная ситуация наблюдается и в других экспериментах, наиболее представительные из которых для твэлов данного типа опубликованы в [6, 45, 48]. Две главные особенности большинства из них состоят в том, что обычно исследуется свободное (не сдерживаемое оболочкой) распухание топлива и в условиях, близких к изотермическим. В то же время известно, что гидростатическое давление из-за сдерживающего влияния оболочки в сильной степени влияет на распухание топлива (см. рис. 2.16). В свою очередь, радиальный градиент температуры, имеющий место в реальном твэле, является одним из факторов, определяющих миграцию пор, формирование столбчатой структуры и вследствие этого — повышенную скорость миграции ГПД из топлива в центральную полость. Кроме того, перестройка структуры топлива сказывается на его прочностных параметрах.

Несмотря на невозможность непосредственного использования для прогнозирования распухания  $UO_2$  в твэлах этого типа описанных выше экспериментальных результатов, приведенные данные в сочетании с модельными расчетами позволяют сформулировать некоторые практические рекомендации для проектирования твэлов ЭГК.



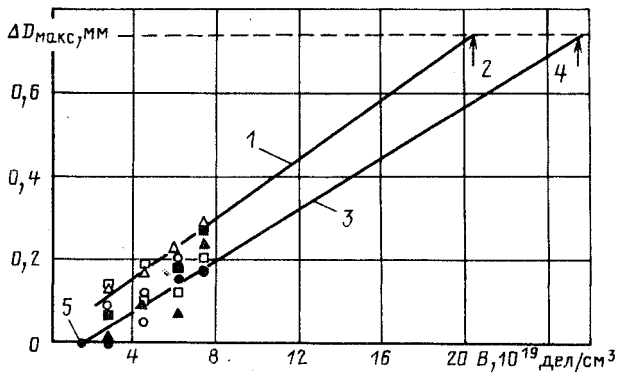


Рис. 3.26. Экспериментальная зависимость максимальной деформации эмиттера ( $\Delta D_{\text{макс}}$ ) от выгорания топлива:

1 — экстраполяция по верхним значениям экспериментальных данных; 2 — прогнозируемый ресурс 25 000 ч; 3 — экстраполяция по нижним значениям экспериментальных данных; 4 — прогнозируемый ресурс 30 000 ч; 5 — экспериментальное значение деформации для всех эмиттеров

Наиболее информативными в отношении создания работоспособного электрогенерирующего элемента являются их испытания в экспериментальных реакторах и петлевых каналах исследовательских реакторов. Например, на рис. 3.26 представлены результаты периодического измерения максимального диаметра эмиттерных узлов (твэлов) шестиэлементного ЭГК методом нейтронографии в процессе испытаний до  $B \approx 8 \cdot 10^{19}$  дел/см<sup>3</sup> [114]. Испытания проводились при температуре эмиттера  $1780 \pm 40$  К, диаметр эмиттера составлял 27,9, толщина оболочки 2,03, межэлектродный зазор 0,37 мм, время испытаний — 8062 ч. На рис. 3.27 [103] показана деформация одного из эмиттеров в процессе петлевых испытаний. Наблюдаемая деформация линейно зависит от выгорания, что дает возможность прогнозировать ресурс работы твэла. В условиях эксперимента прогнозируемая длительность работы ЭГЭ составит около трех лет. На рис. 3.28 [114] показаны зависимость ресурса ЭГЭ, определенного исходя из условия замыкания межэлектродного зазора, от температуры эмиттера, полученная при испытаниях одиночных, двойных и шестиэлементных каналов, и оценки этих результатов с помощью моделей распухания в вязко-упругом приближении. Так как увеличение диаметра эмиттера сильно зависит от его температуры, считается, что для обеспечения ресурса работы более четырех лет необходимо иметь проектное значение температуры не более 1700 К. Рассматриваются также и другие решения, направленные на повышение ресурсоспособности эмиттерного узла, в том числе использование топливных композиций в виде микрочастиц с покрытиями,

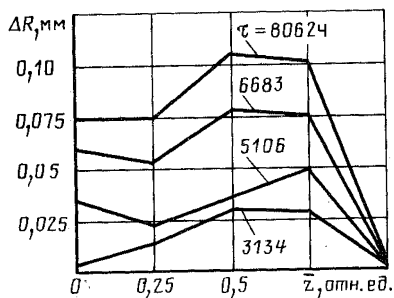


Рис. 3.27. Распределение радиальной деформации ( $\Delta R$ ) в процессе реакторных испытаний в разные моменты времени по длине эмиттера ( $\bar{z}$ ), отсчитываемой от верхнего конца прибора

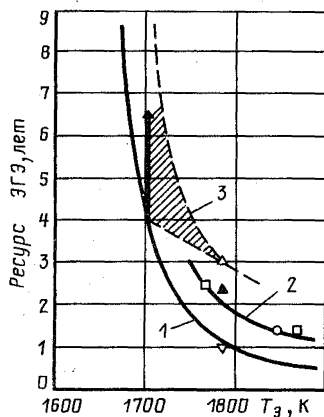


Рис. 3.28. Зависимость ресурса ЭГЭ от температуры эмиттера:

—, — — —,  $\blacktriangle$  — расчет;  $\triangle$ ,  $\circ$ ,  $\square$ ,  $\nabla$  — эксперимент; 1 — толщина оболочки 1,02 мм; 2 — толщина оболочки 1,27 мм; 3 — толщина оболочки 2,03 мм;  $\nabla$  — одиночный ЭГЭ;  $\circ$ ,  $\square$  — двойные ЭГЭ;  $\triangle$  — шестизлементные приборы;  $\blacktriangle$  — одиночный ЭГЭ с удвоенной толщиной оболочки (штриховкой показана область достижимых ресурсов ЭГЭ, толщина оболочки которых 2,03 мм; стрелкой обозначена температурная граница этой области 1700 К)

чтобы исключить взаимодействие топлива с оболочкой и необходимость вывода продуктов деления из-под оболочки ЭГЭ, а также увеличение межэлектродного зазора для возможно большей деформации эмиттера.

Рассмотренные результаты показывают, что для прогнозирования поведения топлива и твэлов ЭГК в процессе работы необходим детальный анализ распухания топлива с учетом реальных энергораспределений, температурных полей, перестройки структуры топлива, осевого и радиального массопереноса в условиях сдерживающего влияния оболочки. Это требует разработки физических и математических моделей с возможно более полным учетом перечисленных факторов, основанных на доступном экспериментальном материале. Наиболее реальными путями снижения деформации твэла ЭГК, которые рассматриваются на практике, являются, в первую очередь, обеспечение надежного вывода ГДУ из полости сердечника путем разработки специального ГОУ, или перехода на топливо с низким давлением пара (например, карбиды и карбонитриды). Снижение деформации может быть достигнуто также улучшением прочностных свойств оболочки и уменьшением числа термодвигов.

### 3.4. Тепловыделяющие элементы с микротопливом для ВТГР

Конструкция твэлов ВТГР и условия эксплуатации. В высокотемпературных реакторах с гелиевым теплоносителем применяются твэлы, основу которых составляет микротопливо с защитным покрытием, — микротвэлы, размещенные в графитовой матрице. Применение в активной зоне ВТГР в качестве теплоносителя инертного гелия и как основного конструкционного компонента графита обеспечивает положительные качества этих реакторов: хороший баланс нейтронов и возможность получения высокой температуры (900–1000 °С) [115, 116]. Особенности состава активной зоны, где отсутствуют материалы, сильно поглощающие нейтроны, приводят к улучшению использования топлива и обеспечивают возможность его глубокого выгорания (10–20%).

Разработаны и используются различные варианты конструкции твэлов ВТГР: шаровой, блочный и стержневой. Наиболее распространение в проектных разработках последнего времени получили твэлы шаровой формы. Конструкционная схема шарового твэла реактора в трех исполнениях показана на рис. 3.29 [117]. В СССР шаровые твэлы разрабатываются применительно к реакторам ВГР-50 и ВГ-400 [118]. Условия работы твэлов в ВТГР характеризуются следующими основными показателями [119, 120]: время облучения 2–5 лет, глубина выгорания 10–15%, флюенс быстрых нейтронов энергией  $E > 0,18$  МэВ равен  $(2 \div 5) \cdot 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup>, относительная мощность 2–6 кВт/твэл, максимальная температура топлива в номинальном режиме 1000–1300 °С, температура топлива в аварийных режимах (кратковременно в течение 5–10 ч) 1200–1600 °С. Диапазоны указанных характеристик связаны с различием конструкций реакторов, их назначением и выходной температурой теплоносителя.

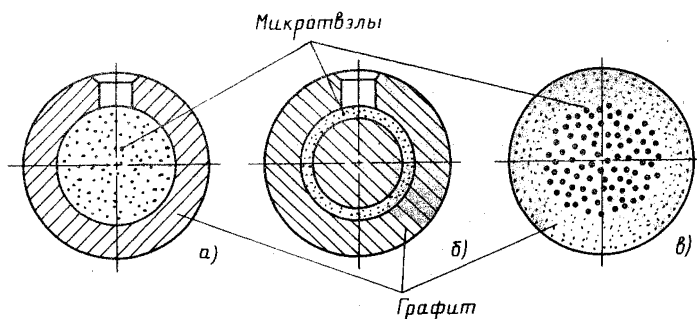


Рис. 3.29. Различные типы шаровых твэлов, используемых в реакторах AVR и THTR (ФРГ):

а — первая загрузка реактора AVR; б — вторая загрузка реактора AVR; в — третья загрузка реакторов AVR и THTR

Основной элемент твэлов высокотемпературных реакторов этого типа — микротвэлы (МТ) — мелкие сферические частицы топлива (сердечник) с защитной оболочкой [121, 122]. Поперечный разрез типичного микротвэла с защитным покрытием показан на рис. 3.30. Микротвэлы имеют диаметр от 200 до 1000 мкм. В качестве топлива используется дикарбид урана ( $UC_2$ ) или диоксид урана ( $UO_2$ ) с обогащением 5–20% по  $^{235}U$ . Применительно к ториевому циклу разрабатывались микротвэлы с высокообогащенным ураном и торием. Покрытия выполняются многослойными и состоят из пиролитического углерода (PyC) с различной структурой и плотностью и карбида кремния (SiC). На ранних стадиях разработки ВТГР применялись МТ с покрытием только из PyC. Отношение суммарной толщины покрытия к диаметру сердечника лежит в интервале 0,15–0,6. Слои оболочки выполняют определенные функции, обеспечивающие работоспособность микротвэла. В настоящее время наиболее оптимальной представляется четырехслойная конструкция оболочки. Первый слой, так называемый буферный, изготавливается из пироуглерода пористостью около 40–60% и толщиной, в несколько раз превышающей средний пробег осколка деления (приблизительно равный  $2,8 \cdot 10^{-3}$  г/см<sup>2</sup>) в PyC. Он предназначен для защиты последующего плотного слоя PyC от воздействия осколков деления и в определенной степени компенсирует объемное распухание топливного сердечника.

Свободный объем, аккумулирующий газы, кроме пористости буферного слоя включает в себя пористость керна (сердечника) и зазор между сердечником и оболочкой. Суммарный свободный объем в сердечнике с буферным слоем во многом определяет допустимое выгорание топлива и его рабочую температуру. Теоретически и экспериментально установлено, что суммарная пористость должна составлять около 2–4% на 1% выгорания тяжелых ядер при температуре 1300–1500 °С.

Последующие пироуглеродные слои (PyC1 и PyC3 на рис. 3.30), а также слой SiC2 являются силовыми оболочками, выдерживающими давление ГПД, и служат также диффузионными барьерами, предотвращающими выход продуктов деления из МТ. Слои PyC1 и PyC3 изготавливаются из изотропного пироуглерода плотностью 1,8–2,2 г/см<sup>3</sup>, плотность слоя из карбида кремния близка к теоретической и должна быть не менее 3,2 г/см<sup>3</sup>.

**Герметичность твэла.** Среди различных требований, предъявляемых к твэлам ВТГР, основным является их способность удерживать продукты деления при нормальной эксплуатации и при аварийных ситуациях. Это требование обусловлено условиями безопасности для окружающей среды при утечке теплоносителя и условиями эксплуатации оборудования первого контура при работе и ремонтных операциях. Выбросы в окружающую среду ограничивают наличие в теплоносителе первого контура  $^{131}I$ , а условия эксплуатации ограничивают наряду с  $^{131}I$  также поступление в контур нуклидов  $^{134}Cs$ ,  $^{137}Cs$ ,  $^{110}Ag$  и  $^{89}Sr$ ,

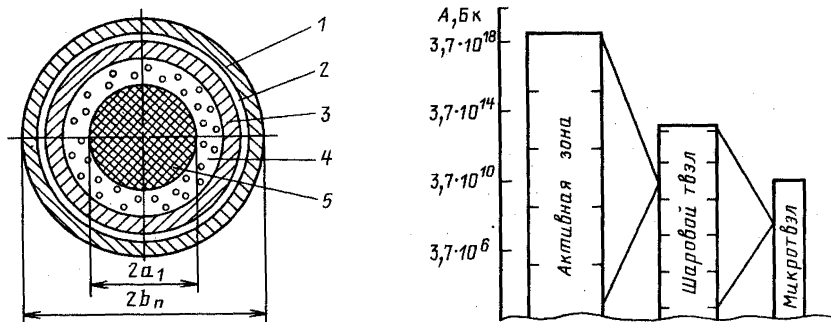


Рис. 3.30. Принципиальная схема микротвэла с четырехслойным покрытием: 1 – наружное покрытие из изотропного пироуглерода ( $\text{PyC}_3$ ); 2 – промежуточный слой из карбида кремния ( $\text{SiC}_2$ ); 3 – внутренний слой из пироуглерода ( $\text{PyC}_1$ ); 4 – внутренний буферный слой из пористого пироуглерода; 5 – топливный сердечник ( $a_1$  – радиус зерна;  $b_n$  – внешний радиус микротвэла)

Рис. 3.31. Дробление активности продуктов деления в активной зоне ВТГР

$^{90}\text{Sr}$ . Все эти условия определяют требование к относительной утечке продуктов деления из твэлов ВТГР на уровне  $R/B \leq 10^{-4} \div 10^{-5}$ .

Принятая схема твэла обладает хорошей герметичностью, которая обеспечивается удержанием продуктов деления как графитовой матрицей твэла, так и, главным образом, покрытиями микротвэлов. Здесь реализован принцип дробления активности путем использования в составе твэла большого числа микрочастиц топлива с индивидуальными покрытиями (рис. 3.31). Таким образом создается дополнительный барьер, так что уровень локализованной активности в реакторе ВТГР на четыре порядка меньше, чем в реакторах других типов.

Многочисленные экспериментальные исследования твэлов ВТГР, в том числе массовые испытания шаровых твэлов в опытных реакторах, этого типа при глубоких выгораниях и высоких температурах показывают их хорошую герметичность, соответствующую предъявляемым требованиям. Так, в реакторе AVR (ФРГ) типичные активности ГПД в первом контуре при температуре горячего газа  $950^\circ\text{C}$  для твэлов с МТ с трехслойным покрытием ( $\text{PyC} + \text{SiC} + \text{PyC}$ ) составляют менее  $7,4 \cdot 10^{11}$  Бк. Частичный выход продуктов деления из твэлов ВТГР в теплоноситель обусловлен следующими причинами: загрязнением внешних покрытий МТ и графитовой матрицы твэлов ураном в процессе изготовления и эксплуатации; наличием в исходном состоянии частиц с дефектными покрытиями; разрушением покрытий микротвэлов вследствие радиационно-термических процессов и при достижении предельного напряженно-деформированного состояния; диффузией продуктов деления через слои покрытий.

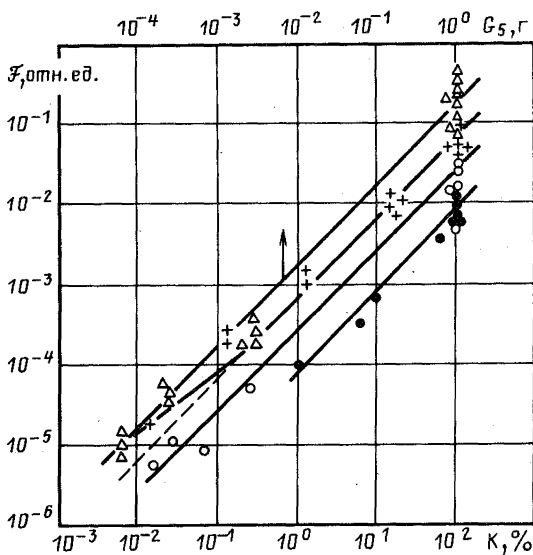


Рис. 3.32. Экспериментальная зависимость относительной утечки  $^{135}\text{Xe}$  от количества свободного (не связанного) топлива  $G_5$  в твэле или от доли микротвэлов с разрушенными покрытиями  $K$ :

● — сердечники МТ без покрытий в графитовой матрице плотностью  $1,86 \text{ г/см}^3$ ; ○ — сердечники МТ без покрытий в графитовой матрице плотностью  $1,68 - 1,78 \text{ г/см}^3$ ; + — после введения сердечников МТ без покрытий макеты подвергались термической обработке при  $t = 1600 \div 1900 \text{ }^\circ\text{C}$ ; △ — топливо гомогенно введено в графит макета твэла

В общем виде относительная утечка продуктов деления из твэлов может быть представлена в виде [123]

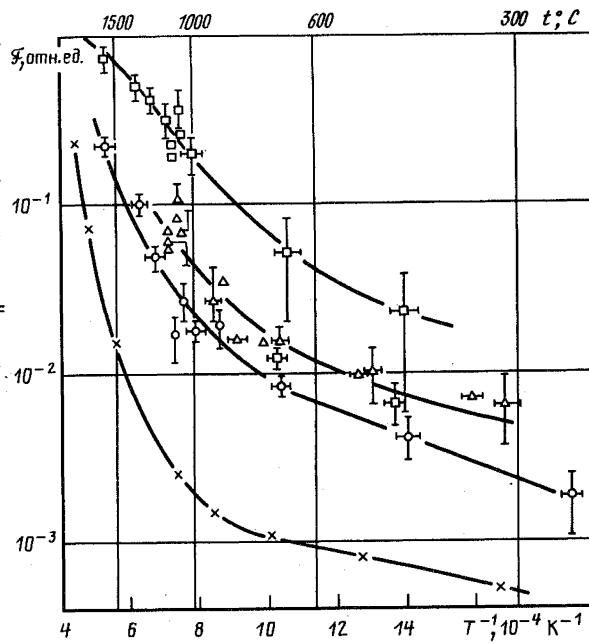
$$\mathcal{F} = f_k f_c f_L \left(1 - \sum_{i=1}^4 l_i\right) + f'_k f_c f_L l_4 + f_{kL} f_c f_L l_1 + f_L f'_c l_2 + f'_L l_3,$$

где  $l_1, l_2, l_3, l_4$  — доли топлива в виде загрязнения покрытий микротвэлов, матрицы сердечника, оболочки твэла и в частицах с дефектными покрытиями соответственно;  $f_k$  — относительная утечка из неповрежденных микротвэлов;  $f'_k$  — относительная утечка из микротвэлов с поврежденными покрытиями;  $f_{kL}, f_c, f_L, f'_c, f'_L$  — относительные утечки из загрязненного покрытия микротвэла, матрицы сердечника и оболочки твэлов при отсутствии и наличии в них загрязнений соответственно.

Экспериментально показано, что утечка продуктов деления из твэла линейно зависит от числа поврежденных микротвэлов и степени загрязнения ураном покрытий и матрицы [124]. На рис. 3.32 [124] приведена зависимость относительной утечки  $^{135}\text{Xe}$  от количества свободного топлива в твэле. В данном случае в макеты твэлов вводились керны МТ без покрытий по принятой технологии изготовления твэла. Аналогичная зависимость наблюдается и при загрязнении топливом графита. При построении кривых выполнена нормировка относительно эле-

Рис. 3.33. Экспериментальная зависимость относительной утечки  $^{135}\text{Xe}$  от температуры:

□ — топливо гомогенно введено в графит макета твэла; ○ — сердечник МТ без покрытия в графитовой матрице плотностью 1,68 — 1,78 г/см<sup>3</sup>; △ — термическая обработка при  $t = 1600 \div 1900$  °С макетов твэлов после введения сердечников МТ без покрытий; × — сердечники из  $\text{UO}_2$



мента, содержащего 1 г  $^{235}\text{U}$ . Абсолютная утечка зависит от следующих факторов: плотности графита матрицы, параметров топливного зерна, условий термообработки, температуры испытаний и т. д. Так, изменение плотности графита матрицы от 1,67 до 1,86 г/см<sup>3</sup> снижает утечку ГПД приблизительно в 10 раз. Термообработка твэла с непокрытыми зернами при  $t = 1600 \div 1900$  °С приводит к увеличению утечки ГПД в 10 раз по сравнению с утечкой до термообработки. Температурные зависимости утечки ГПД, полученные на образцах, моделирующих повреждение микротвэлов и загрязнение матричного графита твэла топливом, показаны на рис. 3.33 [124]. Отмечается, что утечка из ядер микротвэлов, диспергированных в графите, существенно выше, чем из таких же ядер в свободном состоянии.

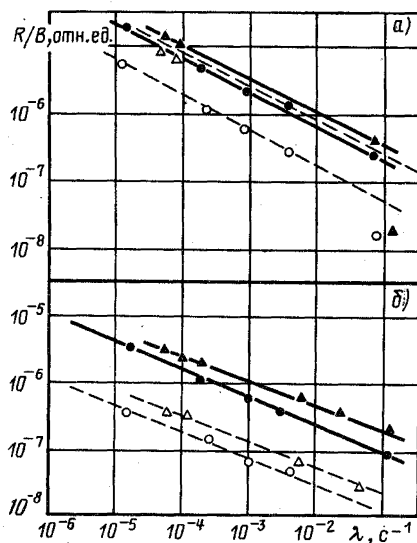
В настоящее время отсутствуют данные, позволяющие учитывать влияние характера дефектов покрытий (как исходных, так и возникающих в процессе работы) на утечку продуктов деления. Поэтому в инженерной практике для оценки негерметичности вводится эквивалентное число микротвэлов  $l_4'$  и  $l_4''$ , имеющих полностью поврежденные покрытия из  $\text{PuC}$  (для характеристики утечки ГПД и галогенов) и  $\text{SiC}$  (для характеристики утечки твердых продуктов деления), при которых интегральная утечка отдельных нуклидов равна наблюдаемой в эксперименте.





Рис. 3.36. Экспериментальная зависимость  $R/V$  от величины  $\lambda$  для ГПД до (светлые символы) и после (темные символы) повреждения покрытия для облучения при  $t_{\text{обл.}} = 980 \div 1150^\circ\text{C}$  (а) и  $t_{\text{обл.}} = 600 \div 900^\circ\text{C}$  (б):

$\Delta, \blacktriangle$  — изотопы криптона;  $\circ, \bullet$  — изотопы ксенона



Для значений энергии активации процесса утечки имеется большое количество разнообразных данных, свидетельствующих о том, что в одном и том же диапазоне температур они могут значительно различаться в зависимости от параметров топлива и условий облучения. Однако качественные закономерности температурной зависимости утечки ГПД можно считать установленными. Основным механизмом выхода ГПД при температуре до  $800^\circ\text{C}$  является механизм ядра отдачи при делении ядер урана в загрязненном покрытии; при температурах  $1000\text{--}1400^\circ\text{C}$  определяющими являются процессы миграции продуктов деления в загрязненном топливном покрытии [125]. На рис. 3.36 приведена типичная зависимость скорости утечки ГПД от постоянной распада  $\lambda$  [123]. При рабочих температурах твэлов ВТГР относительная утечка ГПД, а также I и Te может быть представлена в виде

$$F_i = F_{133\text{Xe}} p \sqrt{\lambda_{133\text{Xe}} / \lambda_i},$$

где  $F_{133\text{Xe}}$  — равновесная относительная утечка  $^{133}\text{Xe}$ ;  $p$  — коэффициент, характеризующий увеличение утечки Kr по сравнению с утечкой Xe (в первом приближении  $p \approx 4$ ). Общая активность I и Te, характеризующих утечку из твэлов, находится на уровне активности Xe [122].

При анализе утечки твердых продуктов деления, таких, как Cs и Sr, необходимо учитывать влияние их взаимодействия с матричным материалом, а также утечку их предшественников  $^{90}\text{Kr}$  и  $^{137}\text{Xe}$  [127, 128].

Достигнутый уровень технологии изготовления МТ и твэлов с соответствующими методами контроля и отбраковки по степени загрязненности микротвэла и матрицы ураном и дефектности покрытий МТ обеспечивает в начальные этапы эксплуатации твэлов низкий уровень выхода радиоактивных продуктов в контур теплоносителя, соответствующий предъявляемым требованиям. В процессе эксплуатации определяющим параметром утечки продуктов деления становится возможная разгерметизация микротвэлов и поступление продуктов деления через покрытия.

Топливо и покрытия микротвэлов подвергаются в процессе работы сильному радиационному воздействию осколков деления и нейтронов. Бомбардировка осколками деления сказывается, главным образом, на изменении параметров топлива и близлежащего к нему буферного слоя покрытия. Нейтронное облучение является основным фактором, влияющим на изменение свойств силовых покрытий  $\text{PuC}$  и  $\text{SiC}$ . Наряду с радиационными в микротвэлах протекают физико-химические процессы, стимулируемые высокой температурой и неравномерностью полей температур. Термические и радиационные воздействия, а также накопление ГПД под оболочкой вызывают изменение напряженно-деформированного состояния покрытий.

Развитие при облучении процессов радиационного воздействия осколков деления на покрытия, химического взаимодействия материалов покрытий, топлива, продуктов деления и остаточных технологических газов, переноса твердых продуктов деления через покрытия, достижения предельного напряженно-деформированного состояния покрытий может привести к нарушению герметичности микротвэлов. Исследованию этих вопросов посвящены многочисленные работы.

**Радиационно-термические эффекты в микротвэле.** На рис. 3.37 [119] показана микрофотография одного из микротвэлов, прошедших радиационные испытания. Буферный слой вследствие бомбардировки его осколками деления претерпевает усадку, что приводит к его шелушению и растрескиванию. При плотности буферного слоя  $\rho = 1,0 \div 1,1 \text{ г/см}^3$  и достаточной его толщине процессы, происходящие при облучении осколками деления, локализуются в нем и разрушения осколками деления защитного слоя  $\text{PuC}_1$ , следующего за буферным, а тем более слоев  $\text{SiC}$  и  $\text{PuC}_3$ , не наблюдается.

В то же время отклонение характеристик микротвэлов от оптимальных может приводить к разрушению и силовых покрытий. Большое значение при этом имеют параметры буферного слоя. Малая его толщина, например  $h \leq 20 \text{ мкм}$ , недостаточна для погашения кинетической энергии осколков деления, и они достигают силового слоя  $\text{PuC}_1$ , что приводит к его уплотнению и частичному разрушению изнутри вследствие образования копьевидных трещин даже при малых выгораниях (приблизительно 2,2%) и температуре облучения 1100–1300 °С (рис. 3.38). При высокой плотности буферного слоя ( $\rho > 1,3 \text{ г/см}^3$ )

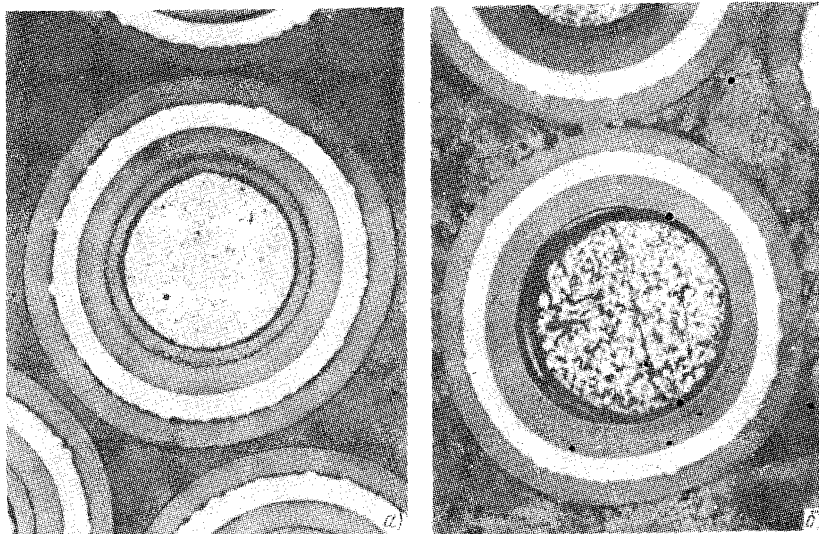


Рис. 3.37. Структура микротвэла партии 44 ( $\times 70$ ):

*a* – до облучения; *б* – после облучения,  $t_{\text{обл}} = 1160 \div 1310$  °С,  $B = 8,5\%$ ,  $F = 2,2 \cdot 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup> ( $E > 0,5$  МэВ)

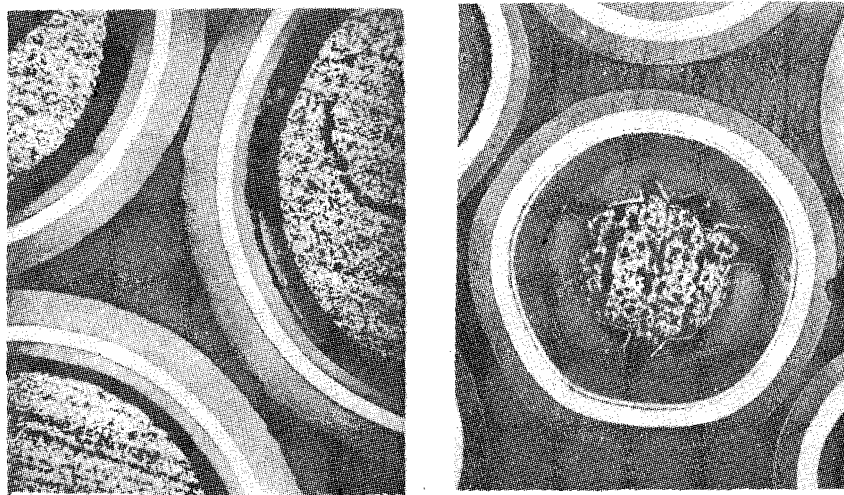


Рис. 3.38. Структура микротвэла партии  $X=3$  ( $\times 70$ ) после облучения [129]

Рис. 3.39. Структура микротвэла партии 72-75, ( $\times 70$ ) после облучения при  $t_{\text{обл}} = 1700$  °С и  $B = 12,2\%$  [129]

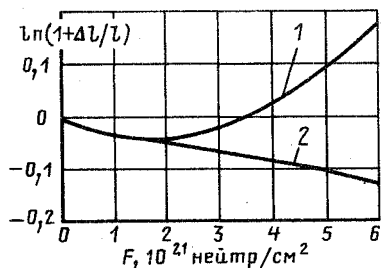


Рис. 3.40. Зависимость размерного изменения изотропного пироуглерода плотностью 1,76 – 1,81 г/см<sup>3</sup> от флюенса быстрых нейтронов ( $E > 0,18$  МэВ) в перпендикулярном к поверхности осаждения (1) и параллельном (2) направлениях при  $t_{\text{обл}} = 1160 - 1270$  °С [133]

в нем возникают копьевидные трещины, которые распространяются в силовой слой РуС1 и частично его разрушают (рис. 3.39). Этому способствует сцепление буферного слоя с защитным слоем РуС1.

Радиационная стойкость слоев РуС при нейтронном облучении чувствительна к их структуре, особенно к плотности и анизотропии [130]. По данным [131, 132], пироуглеродные покрытия при облучении нейтронами обнаруживают усадку в параллельном направлении по отношению к поверхности осаждения, что вызывает образование радиальных трещин, и сначала усадку, а затем набухание в перпендикулярном к поверхности осаждения направлении, что иногда приводит к расслоению покрытий (рис. 3.40). Степень усадки возрастает с уменьшением исходной плотности РуС-покрытий и с ростом анизотропии структуры этих покрытий. Так, если в исходном состоянии РуС-покрытия имеют неоднородную, волокнистую, анизотропную структуру и невысокую плотность ( $\rho \leq 1,6$  г/см<sup>3</sup>), то облучение приводит к образованию трещин как во внешнем, так и во внутреннем защитных слоях [119, 134] (рис. 3.41). Повышенной работоспособностью обладают радиационно стойкие изотропные пироуглеродные покрытия [133].

Результаты этих работ показывают, что подбором характеристик защитных слоев можно обеспечить работоспособность силовых РуС-покрытий по крайней мере до флюенсов быстрых нейтронов около  $2,2 \cdot 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup> в широком интервале температур (1100–1900 °С).

Образовавшиеся продукты деления ведут себя в топливе по-разному в зависимости от их физико-химических свойств [135]. Инертные газы Кг и Хе в значительной степени выходят, как описано в гл. 2, в поры топлива и заполняют свободный объем буферного слоя. Они полностью задерживаются слоем плотного РуС и создают давление под оболочкой.

Поведение Cs в топливе зависит от температуры. При высоких рабочих температурах Cs не образует соединений с другими продуктами деления и с оксидным топливом, и в этом случае его поведение аналогично поведению ГПД. Он выходит в значительной мере в поры топлива и в свободный объем буферного слоя. Цезий, как и ГПД, задерживается слоем РуС1 практически полностью, однако при этом образуются соединения внедрения с пироуглеродом.

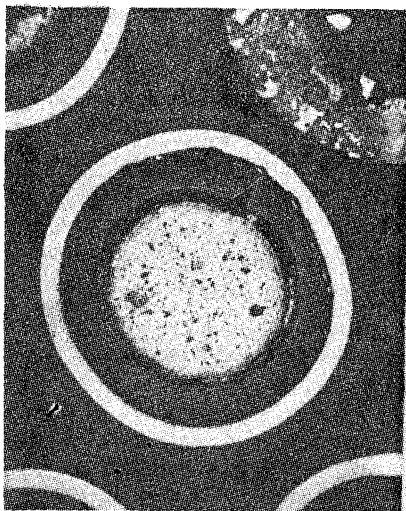
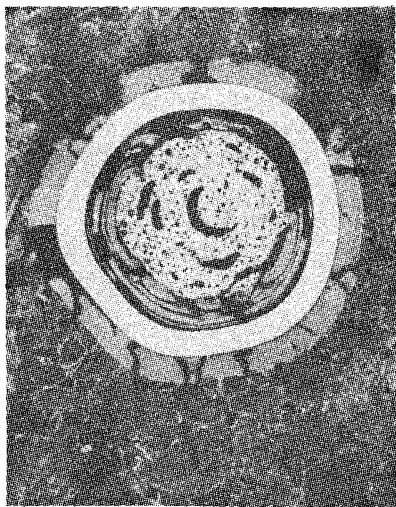


Рис. 3.41. Структура микротвэла партии 21 ( $\times 70$ ) после облучения:

$$t_{\text{обл}} = 1130 \div 1270 \text{ }^\circ\text{C}, B = 6,7\%; F = 1,7 \cdot 10^{21} \text{ нейтр/см}^2 (E > 0,5 \text{ МэВ}) [119]$$

Рис. 3.42. Повреждение слоя SiC микротвэла после облучения:

$$t_{\text{обл}} = 1230 \div 1380 \text{ }^\circ\text{C}; B = 9,7\%; F = 2,1 \cdot 10^{21} \text{ нейтр/см}^2 (E > 0,5 \text{ МэВ}) [119]$$

Щелочноземельные элементы Ba и Sr ограниченно растворимы в оксидном топливе. Они образуют с  $ZrO_2$  фазу цирконата  $(Ba, Sr)ZrO_3$ , который также содержит уран. Их перенос в топливе в нормальных условиях практически отсутствует, хотя при  $t > 1800 \text{ }^\circ\text{C}$  эта фаза разлагается, особенно благодаря присутствию следов Si, образующегося даже при незначительном разложении слоя SiC. В этом случае наблюдается миграция Ba и Sr в поры слоя  $PuC$ .

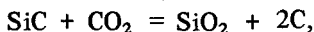
Оксиды редкоземельных элементов и Zr образуют твердые растворы с  $UO_2$ . Этим объясняется высокое удержание в топливе  $^{144}\text{Ce}$ .

Mo, Te и благородные металлы Rh, Ru и Pd присутствуют в топливе в виде металла, образуя сплавы.

Основным силовым слоем, выдерживающим давление накапливающихся в МТ продуктов деления, является слой SiC. Сам по себе материал SiC обладает высокой радиационной стойкостью по отношению к нейтронному облучению, и при правильном выборе конструктивных параметров и технологических режимов этот слой обеспечивает целостность МТ. Однако в процессе работы, а тем более в аварийных ситуациях, могут возникать нарушения слоя SiC из-за химических взаимодействий с продуктами деления, топливом и газами ( $CO, CO_2$ ), которые ослабляют этот слой и могут привести к его разгерметизации

под действием внутреннего давления ГПД. Особенно интенсивными эти процессы становятся, когда слой SiC оголяется при возникновении трещин в плотном  $\text{PuC1}$  или вследствие "амеба"-эффекта.

Следы взаимодействия (коррозии) внутренней поверхности SiC видны на рис. 3.42 в микротрещлах, у которых в процессе облучения образовались трещины в слое  $\text{PuC1}$ . Эта коррозия обусловлена, по всей видимости, реакцией



так как изменение стандартного термодинамического потенциала отрицательно [130] ( $\Delta G_{1250}^0 = -200$  кДж/моль). Отмечается также проникновение  $\text{UO}_2$  в трещины слоя пиролитического графита.

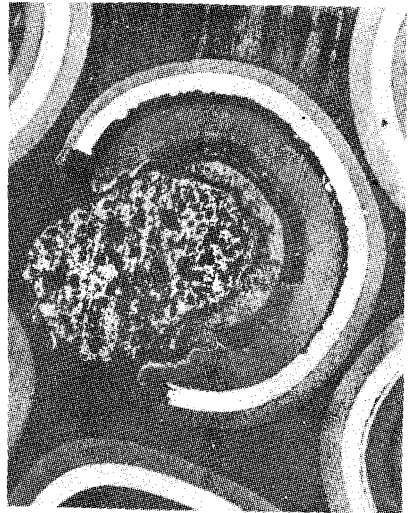
Взаимодействие твердых продуктов деления с SiC и выяснение механизма его повреждения в условиях повышенных температур, соответствующих аварийным режимам, изложены в [135]. В этой работе показано, что при высокотемпературном отжиге макетов МТ с заранее введенными в сердечник имитаторами твердых продуктов деления перестройку структуры SiC может вызвать взаимодействие с металлами Mo, Te и с благородными металлами Ru, Rh и, особенно, с Pd. Мо реагировал с  $\text{PuC}$  с образованием  $\text{MoC}_2$  и  $\text{UMoC}_2$ ; Pd находился в слое  $\text{PuC}$  в виде  $\text{UPd}_3$ . Миграция всех этих металлов наблюдалась при отжиге МТ в диапазоне температур 1600–2400 °С, причем Pd выходил из сердечника почти полностью и реагировал с слоем SiC с образованием жидкой фазы эвтектики, которая вызывает перестройку структуры SiC. При этом обращается внимание на то, что изменение в процессе облучения натуральных МТ кислородного потенциала в топливе может повлиять на поведение металлических продуктов деления, снижая их подвижность и приводя к пассивации слоя SiC за счет образования  $\text{SiO}_2$ .

Для улучшения поведения микротрещлов при повышенных температурах рассматривается введение в сердечник различных геттеров, например  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ , что позволяет снизить выход из топлива некоторых продуктов деления, в частности Cs. Изучаются также в качестве топлива смешанные композиции  $\text{UO}_2 + \text{UC}$  или  $\text{UC} + \text{UN}$ , а в качестве покрытия рассматривается карбид циркония. Предполагается, что такое топливо может работать при температуре 1500 °С [127].

При некоторых условиях облучения (при  $t = 1300 \div 1500$  °С и выгораниях 6–15%) при наличии температурного градиента в микротрещлах наблюдается "амеба"-эффект, при котором углерод с "горячей" зоны покрытия  $\text{PuC}$  переносится на "холодную" и происходит разрушение покрытия изнутри [129]. При этом смещение зерна и степень разрушения зависят от условий испытаний. При температурах выше 1700 °С и выгорании 12–14% наблюдался "амеба"-эффект, приводящий к полному сквозному разрушению покрытий (рис. 3.43).

На основе результатов экспериментов и теоретических представлений описываются отдельные процессы, приводящие к "амеба"-эффек-

Рис. 3.43. Структура микротвэла партии 72-75 после облучения ( $\times 70$ ):  
 $t_{\text{обл}} = 1700 \div 1900$  °C и  $B = 14,1\%$  [129]



ту, однако полной модели, включающей в себя весь комплекс процессов переноса внутри МТ, пока не разработано. В [129] на основе исследований структуры углеродного осадка на "холодной" стороне покрытия принято, что перенос углерода осуществляется через газовую фазу, например в виде СО по схеме  $2\text{CO} = \text{C} \downarrow + \text{CO}_2$  (рис. 3.44). Зависимость смещения ядра от температуры, градиента температуры, глубины выгорания и времени облучения  $\tau$  определяется выражением

$$l = k \frac{1}{T^2} \text{grad } T \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \tau.$$

Обработка экспериментальных значений смещения, определяемых металлографическим методом, в виде [132]

$$\text{КМК} = \left( \frac{T^2}{\text{grad } T} \frac{l}{\tau} \right)_{\text{эксп}} = k \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right),$$

где  $Q$  – энергия активации лимитирующего процесса;  $R$  – универсальная газовая постоянная, позволяет построить температурную зависимость коэффициента миграции ядра (КМК) (рис. 3.45) [119, 129, 130].

В этих экспериментах получено, что энергия активации процесса смещения ядра близка к энергии самодиффузии кислорода в  $\text{UO}_2$ , т. е. можно предположить, что этот процесс является лимитирующим в цепочке процессов, приводящих к "амеба"-эффекту.

Полученные таким образом значения КМК позволяют оценить время миграции ядра до слоя SiC. Так, в [130] получена скорость миграции топливного ядра из  $\text{UO}_2$ , которая при выгорании до 9,7% и температурах 1230–1380 °C составила около 5 мкм/мес. Достижение мигрирующим топливным сердечником слоя SiC считается недопустимым, так как в последующем происходит быстрое разрушение этого слоя. Поэтому при разработке МТ его параметры и условия эксплуатации принимаются такими, чтобы предохранить слой SiC от контакта с

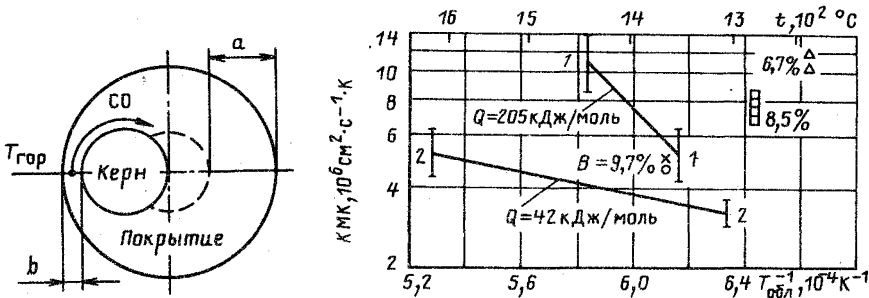


Рис. 3.44. Схема смещения керна в результате переноса углерода ( $T_{гор}$  — температура горячей стороны;  $l = \frac{a-b}{2}$  — смещение керна)

Рис. 3.45. Зависимость коэффициента миграции керна от температуры облучения:

x — партия 65-ДОПСВКВ; o — партия 43-ДОПСВКВ; □ — партия 44-ДОПСВКВ; Δ — партия 21-У-ОП-1-Х-78; x, o, □, Δ — КМК индивидуальных МТ с локальным значением  $\text{grad } T$ ; 1-1 — партия 5-76 (исследовано 6 МТ); 2-2 — партия 16-ДОПСВКВ (исследовано 18 МТ)

топливом. Когда за счет "амеба"-эффекта происходит исчезновение слоя  $\text{RuS}$ , начинается коррозия слоя  $\text{SiC}$ , приводящая к его утонению и ухудшению механических свойств материала. Динамика изменения толщины прокорродированного слоя по результатам изучения облученных микротвэлов может быть представлена в виде [136]

$$y = k\tau^n, \quad k = k_0 \exp(-Q/RT), \quad (3.3)$$

где  $y$  — толщина прокорродированного слоя, м;  $\tau$  — время облучения, с;  $T$  — температура облучения, °С. Константы в соотношении (3.3) были определены из сравнения полученных при облучении в реакторе BR-2 статистических данных по разгерметизации больших партий МТ и вариантных расчетов прочностного разрушения слоя  $\text{SiC}$  при разных его толщинах. Соотношение (3.3) в этом случае представляется в виде

$$\lg y = -4,70 - 0,65 \cdot 10^4/T + 0,5 \lg \tau.$$

Значения константы  $n = 0,5$  и энергии активации  $Q = 124$  кДж/моль близки к значениям, найденным в лабораторных условиях для карбидного топлива при градиентах температуры  $300$  °С/см.

**Напряженно-деформированное состояние микротвэла.** Газообразные продукты деления, выходящие из топлива, создают давление под оболочкой микротвэла. Уровень давления определяется количеством высвобождающегося газа, пористостью сердечника и буферного слоя, темпе-



ратурой микротвэла и выгоранием топлива. Измерения давления под оболочкой показывают, что оно достигает нескольких сот атмосфер, поэтому оболочка выполняет функции сосуда высокого давления. Дополнительное воздействие на оболочку может возникнуть при распухании сердечника за счет накопления ГПД в закрытых порах и твердых продуктах деления в матрице топлива.

Эти процессы, а также анизотропные измерения размеров пироуглеродных покрытий при облучении и несогласованные температурные расширения материалов покрытий приводят к сложному напряженно-деформированному состоянию (НДС) микротвэла. В результате изменения НДС и достижения его предельных значений в процессе работы может произойти разрушение оболочки МТ с выходом продуктов деления в твэл и далее — в теплоноситель первого контура.

Экспериментальные исследования и расчеты НДС покрытий показывают, что основную несущую способность оболочки обеспечивает слой SiC, причем на начальном этапе работы за счет радиационной усадки слоев из PuC он подвержен сжимающим усилиям, несмотря на растущее внутреннее давление ГПД под оболочкой. Принимается, что достижение требуемых проектных выгораний микротвэлов при достаточной располагаемой пористости сердечника и буферного слоя может быть обеспечено при отношении толщины плотных слоев оболочки к диаметру сердечника с буферным слоем  $T/D > 0,3$ . Приблизительно такое же требования к толщине покрытий обеспечивает снижение загрязнения покрытий ураном до допустимого уровня при газофазном их нанесении на топливный сердечник.

При изготовлении микротвэлов основные их параметры, такие, как толщина покрытий, размеры сердечника, располагаемая пористость, а также физико-механические свойства материалов и их изменения в процессе работы, имеют статистический разброс. В силу этих причин достижение предельных значений НДС и разгерметизация микротвэла при облучении в реакторе носят постепенный характер в зависимости от выгорания. На рис. 3.46 [136] показана зависимость разгерметизации микротвэлов от выгорания, полученная при испытании МТ в канале реактора BR-2 при температуре 1550 °С. Обработка результатов этих испытаний была проведена с помощью программы STRESS, которая позволяет рассчитывать НДС в МТ с использованием известных статистических распределений параметров микротвэлов, таких, как диаметр сердечника и толщины покрытий, и распределений параметров карбида кремния. Совпадение расчетных и экспериментальных данных было достигнуто, когда были учтены закономерности движения сердечника в PuC ("амеба"-эффект) и последующая коррозия SiC, приводящая к утонению этого слоя и изменению его прочностных свойств.

При повышенных температурах, которые могут возникнуть в течение относительно короткого времени при аварийных процессах, например связанных с разгерметизацией первого контура, создаются пред-

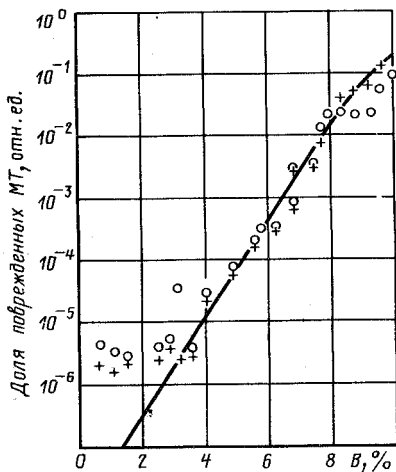


Рис. 3.46. Зависимость доли поврежденных МТ от выгорания:

○, + — эксперимент; — — расчет

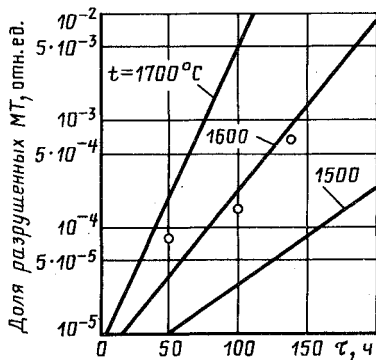


Рис. 3.47. Зависимость доли разрушенных микротвэлов от длительности режима при повышенных температурах:

— — расчет; ○ — экспериментальные данные при  $t = 1600^\circ\text{C}$

посылки разрушения МТ вследствие более высокого внутреннего давления газа и ускорения коррозии SiC. На рис. 3.47 [120] показаны экспериментальные данные разрушения МТ при их перегреве до  $1600^\circ\text{C}$  в зависимости от времени выдержки при повышенных температурах и результаты расчета доли разрушенных МТ при нагреве до различных температур в зависимости от длительности перегрева, полученные с помощью расчетной модели, описанной в [137]. Так, при температуре аварийного перегрева  $1600^\circ\text{C}$  допустимая доля разрушений, равная  $5 \cdot 10^{-4}$ , превышает лишь спустя 120 ч пребывания при повышенной температуре. Эта зависимость позволяет определить при заданной до-

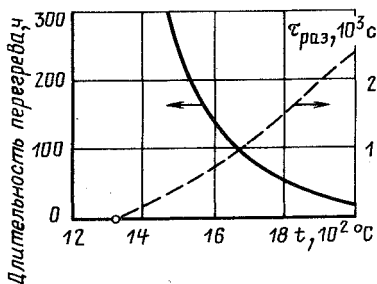


Рис. 3.48. Зависимость длительности аварийного перегрева (сплошная линия) и времени разогрева за счет остаточного тепловыделения (штриховая линия) от температуры при допустимой доле разрушенных микротвэлов  $10^{-3}$  (на оси абсцисс показана точка рабочей температуры)

пустимой доле разрушенных МТ длительность аварийного перегрева до той или иной температуры. Такая зависимость показана на рис. 3.48, где дана также оценка времени разогрева до данной температуры за счет остаточного тепловыделения при консервативном предположении о полном отсутствии теплоотвода от твэла. Эти данные характеризуют высокую аварийную устойчивость графитовых твэлов с МТ для высокотемпературных реакторов. Установление закономерности поведения микротвэлов при облучении в нормальных и аварийных ситуациях является основой выбора параметров проектирования твэлов ВТГР, обеспечивающих высокие температуры и выгорание топлива при необходимой надежности и безопасности.

#### ГЛАВА 4

### МОДЕЛИРОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ПРИ ОБЛУЧЕНИИ

#### 4.1. Введение

Одной из основных практических задач изучения поведения топлива при облучении является построение математических моделей, позволяющих рассчитывать изменение параметров твэла в процессе эксплуатации с целью прогнозирования его ресурсоспособности. Конечный результат моделирования (прогнозирования) должен содержать изменение от времени облучения основных величин, определяющих работоспособность твэла: безопасность, целостность, энергетические показатели. Основными характеристиками в этом плане являются выход газообразных продуктов деления под оболочку и за пределы твэла, геометрические изменения твэла, вызванные выделением газов под оболочкой и распуханием топлива.

В общем случае прогнозирование работоспособности твэла в целом как элемента конструкции реактора требует согласованного решения задач термического, радиационного и механического поведения системы топливо—оболочка с учетом конструкционной схемы и условий эксплуатации твэла в реакторе. Термическая и радиационная части задачи включают в себя расчет пространственно-временных распределений температуры и газообразования в твэле, изменения структуры и спекания топлива, массоперенос топлива, миграцию продуктов деления (в основном газообразных) с образованием закрытых пор и пузырей, приводящих к локальному распуханию топлива, а также давления и состава газовой смеси под оболочкой. Прочностная часть задачи состоит в определении деформаций  $\epsilon_{ij}$ , напряжений  $\sigma_{ij}$  и перемещений  $u_i$  ( $i, j = 1, 2, 3$ ) элементов конструкции твэла в условиях взаимовлияния всех перечисленных факторов. Очевидна взаимосвязь всех этих процессов. Так, распределение температуры зависит от перестрой-

ки структуры и массопереноса топлива как из-за изменения его свойств, так и из-за изменения тепловыделения; перестройка структуры топлива связана с интенсивностью радиационных процессов и, в свою очередь, определяет характер миграции продуктов деления и образования закрытых пор и пузырей; накопление и состав газовой смеси под оболочкой сказывается на температурных характеристиках топлива; механическое поведение топлива и оболочки, естественно, связано с температурными полями, изменяющимися при перестройке структуры и облучении, а также со свойствами и геометрией топлива и т. д.

Таким образом, проблема в целом состоит в сложных комплексных итерациях систем уравнений вида

$$\left. \begin{aligned} T &\equiv f_1(\tau, r_i, u_i, F_d, L, R, \dots) = 0; \\ L &\equiv f_2(\tau, T, F_d, B, S, R, \dots) = 0; \\ S &\equiv f_3(\tau, T, F_d, B, L, R, \sigma_{ij}, \dots) = 0; \\ R &\equiv f_4(\tau, T, F_d, B, L, S, \dots) = 0; \\ \sigma_{ij} \epsilon_{ij} u_i &= f_5(\tau, T, S, L, F, P_i, r_i, \dots) = 0; \end{aligned} \right\}$$

где  $r_i$  — пространственные координаты точек тела (геометрия);  $L$  — размер зерна или иной параметр, характеризующий структуру топлива;  $R$  — величина, характеризующая миграцию и выход ГПД из топлива;  $B$  — глубина выгорания;  $F$  — флюенс нейтронного потока;  $P_i$  — силовая нагрузка;  $S = \Delta V/V$  — распухание топлива;  $F_d$  — скорость делений.

На основании решения подобных систем может быть сделано заключение о работоспособности твэла, т. е. об обеспечении энергетических показателей при требуемой герметичности (радиационная безопасность) и теплотехнической надежности, обусловленной деформацией или нарушением геометрии твэла. В наиболее совершенных из современных методик [85, 138–140] (см. также [97]) перечисленные выше вопросы в той или иной мере находят отражение. Многие задачи доведены до составления вычислительных программ для ЭВМ, причем наиболее детально проработаны термический и прочностной аспекты задачи. Наименее изученными остаются вопросы перестройки структуры и переконденсации топлива, миграции ГПД и газового распухания топлива, хотя работы в этом направлении ведутся весьма интенсивно. Проявлением указанной ситуации, в частности, служит использование во многих расчетных программах [85] эмпирических соотношений типа (3.1), в которых распухание считается пропорциональным выгоранию тяжелых ядер, а коэффициент пропорциональности определяется опытным путем для конкретного типа твэлов. Использование подобных соотношений обусловлено необходимостью решения проектных задач, связанных с определением требуемых компенсационных объемов под оболочкой, обеспечения гарантированного зазора и др. Однако без детального учета

физической природы процессов в топливе не удается решить ряд вопросов прогнозирования эксплуатационных характеристик для твэлов, у которых область структуры выросших равноосных зерен и столбчатая структура могут охватывать весьма значительный объем топливного сердечника и тем самым определяющим образом влиять на формирование и ресурсоспособность твэла. Поэтому вопросы моделирования поведения высокотемпературного ядерного топлива, и в том числе газовой выделения и набухания топливных композиций при высоких температурах, требуют дальнейших усилий.

На основе изложенного выше анализа экспериментальных и теоретических работ, посвященных поведению высокотемпературного ядерного топлива при облучении, в этой главе рассматриваются опубликованные в литературе и оригинальные подходы к моделированию радиационного поведения топлива в твэлах различных типов. Основное внимание при этом сосредоточено на вопросах моделирования газового набухания топлива. Температурный и прочностной аспекты задачи затрагиваются лишь в той мере, в какой это необходимо для понимания протекающих в твэле процессов, анализа и формулирования модельных представлений о поведении высокотемпературного ядерного топлива при облучении.

#### 4.2. Модели газового набухания

**Исходные положения моделирования.** Как было показано выше, проблемы газовой выделения и набухания высокотемпературного топлива присущи всем без исключения типам твэлов. Эти процессы, хотя и в разной степени, оказывают влияние на работоспособность твэлов рассмотренных типов реакторов. Поэтому расчетное моделирование газового набухания топлива в условиях газовой выделения имеет принципиальное значение для прогнозирования эксплуатационных характеристик твэлов в целом.

Точное моделирование столь сложного явления, как набухание, состоящего из большого числа взаимосвязанных и пока еще не полностью расшифрованных процессов, в настоящее время затруднено. В связи с этим работы по математическому моделированию ведутся, как правило, в двух направлениях: по линии развития детальных теоретических моделей частных физических процессов и в плане приближенного инженерного моделирования поведения топлива в составе твэла.

Теоретические модели основываются на возможно более детальном описании процессов, но не охватывают явления в целом. Эти модели, разработанные для локального объема топлива, при анализе экспериментальных результатов помогают оценить роль отдельных процессов и факторов. С их помощью можно сравнить топливные композиции и оценить ограничения эксплуатационных режимов, однако они не дают возмож-

ности учесть поведение твэла как целого с учетом таких явлений, как реальное взаимодействие топлива с оболочкой, изменение во времени полей температур, структуры, геометрии сердечника и т. д.

Инженерные модели позволяют провести расчеты конечного инженерного эффекта: выход ГПД из топлива и деформацию твэла в зависимости от параметров его эксплуатации. Такие модели имеют упрощения в детализации физических представлений и, как правило, включают параметры, позволяющие нормировать модель на экспериментальный результат. В моделях этого типа рассматривается деформация топливной матрицы и оболочки под воздействием напряжений, возникающих в результате избыточного давления газа в пузырьках. Приращение объема топливной композиции осуществляется посредством ползучести или пластической деформации. Последний механизм обычно имеет место при больших скоростях накопления газа. Как уже упоминалось, в условиях высокотемпературного облучения в реакторе наиболее вероятно диффузионная ползучесть. Механизм роста пузырей, как это было предложено в 1963 г. в [141], может рассматриваться в двух вариантах: 1) диффузия вакансий в поры скорректирована с притоком атомов газа, так что  $p \approx 2\gamma/R$  (или  $\sigma \ll 2\gamma/R$ ), и тогда скорость распухания определяется диффузией атомов газа в пузырь; 2) распухание обусловлено ползучестью материала ( $\sigma|_{r=R} = -p$ ,  $\sigma|_{r=\infty} = 0$ ) и контролируется ее законами.

В последнее время происходит объединение достаточно сложных физических моделей, отражающих отдельные процессы в топливе, в замкнутый комплекс расчетных программ, дающий возможность проводить инженерные расчеты выхода газа и напряженно-деформированного состояния реального твэла. Примером такого объединения, хотя и не во всех аспектах сбалансированного, служат программы [85, 139].

**Теоретические модели.** Рассмотрим подробнее несколько моделей первого типа в хронологическом порядке, который в определенной степени отражает прогресс в накоплении экспериментальных данных. По мере получения новых экспериментальных результатов и углубления понимания элементарных процессов, математические модели усложняются. При этом в них включается все большее число действующих факторов и процессов.

В последних моделях можно различать следующие элементарные процессы, из которых складываются явления выхода газа из топлива и распухание: зарождение внутризеренных пузырей, рост ВЗП, выход газа на границы зерен, накопление газа в МЗП, выход газа из МЗП за пределы топливной композиции.

В подобных моделях вычисляется содержание газа в растворе, в ВЗП и МЗП, выход газа из топлива и его распухание.

Одна из первых моделей газового распухания была разработана Гринвудом [41] для распухания металлического урана. Однако эта

модель оказалась в большей степени приемлемой для  $UO_2$ , чем для металлического урана. В ней подробно рассматривается процесс гомогенного зарождения ВЗП и их рост путем диффузии атомов газа из матрицы в пузыри.

Теория Гринвуда была использована в работах Уофема, предложившего математическую модель зарождения и роста ВЗП с учетом процесса перерастворения атомов газа под воздействием осколков деления и слияния пузырьков вследствие их хаотического перемещения [42]. Сток атомов газа на границы зерен при этом не учитывался, в связи с чем в расчетах по этой модели количество газа в растворе и ВЗП линейно увеличивается со временем, а набухание топлива определяется только ВЗП и поэтому мало. По-видимому, такая модель может быть применима на ранних стадиях облучения и при низких температурах, т. е. в тех случаях, когда выход ГПД на границы мал и им можно пренебречь.

В последующих моделях учитывается выход ГПД на границы зерен. Рассматриваются два механизма выхода ГПД на границы зерен: механизм диффузии атомов газа и миграция пузырьков (в концентрационном и температурном полях).

*Модели, основанные на диффузионном выходе ГПД.* В [37] предложена диффузионная модель выхода газа на границы зерен, которые считаются абсолютными стоками. Кроме границ дополнительными стоками для газа служат ВЗП. При этом газ, попавший в ВЗП, в отличие от газа, вышедшего на границы, подвержен перерастворению. Поведение газа на границах зерен не рассматривается.

Концентрация ВЗП принята постоянной в процессе облучения и равной  $10^{14}$  см<sup>-3</sup>, что более чем на три порядка меньше концентрации, наблюдаемой экспериментально.

В этой модели, также как и в других диффузионных моделях, решается уравнение баланса атомов газа, растворенных в матрице зерна, аналогично представленным в § 2.3. Сток газа на границы приводит к тому, что в отличие от модели Уофема, концентрация газа в растворе  $C_c$  и ВЗП  $C_b$  (рис. 4.1) в процессе облучения достигает насыщения. Таким образом, начиная с некоторого момента времени на границы зерен выходит практически такое же количество газа, что и рождается за счет делений (кривая  $C_g$  на рис. 4.1). Уровень насыщения и время его достижения зависят от различных факторов: концентрации ВЗП, температуры, скорости деления, размера зерна. Время достижения насыщения при некоторых комбинациях параметров облучения выходит за пределы реального. Насыщение достигается тем быстрее, чем меньше концентрация ВЗП, выше коэффициент диффузии (температура), меньше скорость делений и размер зерна.

На рис. 4.2 в качестве примера представлена температурная зависимость  $C_c$ ,  $C_b$ ,  $C_g$  ( $C_g$  — концентрация газа, вышедшего на границы)

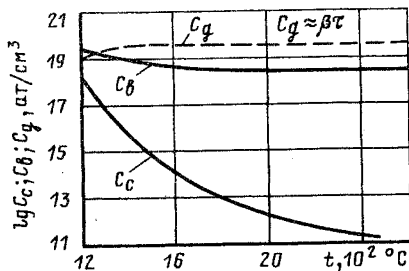
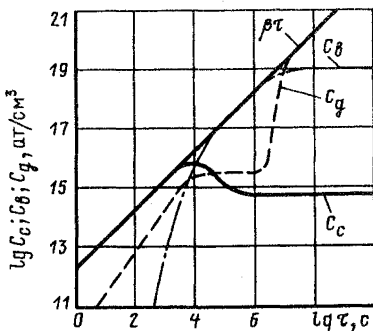


Рис. 4.1. Зависимость количества ГПД в  $UO_2$  от времени облучения (модельный расчет) при  $t_{обл} = 1500^\circ C$ ;  $L_{зер} = 20$  мкм;  $F_d = 6,8 \cdot 10^{12}$  дел/( $см^3 \cdot с$ );  $D = 5 \cdot 10^{-12}$   $см^2/с$ ;  $\eta = 1,9 \cdot 10^{-6} с^{-1}$ :

$\beta\tau$  – общее количество ГПД;  $C_c$  – в растворе;  $C_b$  – в ВЗП;  $C_g$  – вышедшего на границу зерна [37]

Рис. 4.2. Зависимость количества ГПД в  $UO_2$  от температуры облучения в момент  $\tau = 2 \cdot 10^7$  с (модельный расчет, параметры расчета те же, что на рис. 4.1)

для конкретного режима облучения, построенная на основании расчетных результатов [37]. Значения  $C_c$  при  $\tau = 2 \cdot 10^7$  с для всех указанных температур являются уровнем насыщения. Количество ГПД в ВЗП  $C_b$  достигает насыщения к рассматриваемому моменту времени при температуре выше  $1500^\circ C$ . Видно, что с ростом температуры (коэффициента диффузии) концентрация насыщения растворенного газа резко уменьшается.

Диффузионная модель [142], разработанная для монокарбидного топлива, основана на тех же принципах, что и предыдущая модель. Представляют интерес следующие ее особенности.

1. Число зародышей пузырей  $N$  в соответствии с моделью [44] устанавливается постоянным после того, как сравниваются потоки рождения газа  $\beta$  и скорости перерастворения зародышей  $\eta$ ,  $\beta = \eta Nm^*$  [41], где  $m^*$  – число атомов в зародыше, принятое равным 2;  $N = 10^{16} \div 10^{17} см^{-3}$ , что совпадает с экспериментальными наблюдениями.

2. После завершения периода зародышеобразования генерируемый газ повышает концентрацию в растворе  $C_c$  и мигрирует к ВЗП и МЗП. Количество газа в ВЗП в каждый момент времени находится в равновесии с количеством растворенного газа, т. е. установление равновесия принято мгновенным. Таким образом, определенное преимущество предоставлено стоку в ВЗП. Диффузия газа в МЗП протекает в соответствии с распределением концентрации  $C_c$  по радиусу зерна. Средние размеры ВЗП, получаемые в параметрических расчетах, превышают экспериментально наблюдаемые размеры. Поток газа на границы зер-



на мал, и соответственно мала роль МЗП в распухании топлива. В связи с большой "емкостью" зерна в этой модели не наблюдается насыщение концентрации газа в растворе и ВЗП (рис. 4.3) за время облучения до  $5 \cdot 10^7$  с.

3. После заполнения 75% площади границ пузырями образуется связанная система каналов, которая в дальнейшем не изменяется. Весь газ, выходящий на границы после этого, сразу же удаляется из топлива. Распухание топлива за счет МЗП, при котором происходит образование системы каналов  $(\Delta V/V)_{кр}$ , уменьшается обратно пропорционально квадрату размера зерна, и для УС, размер зерна которого составляет около 600 мкм,  $(\Delta V/V)_{кр}$  составляет всего лишь около 10<sup>2</sup>%.

В отдельную группу в модели выделены ВЗП, закрепленные на включениях второй фазы (для УС это могут быть включения  $UC_2$ ,  $U_2C_3$ ). Причем ВЗП на включениях, по экспериментальным наблюдениям, растут быстрее, чем в матрице. В расчетах это учитывается уменьшенным параметром перерастворения газа  $\eta$  из ВЗП, закрепленных на включениях, уменьшение скоррелировано с данными электронной микроскопии.

В модели [38, 143] на ранней стадии разработки рассматривалось образование двухатомных зародышей ВЗП по механизму Гринвуда—Уофема. При этом предполагалось, что не все атомы газа участвуют в миграции и образовании зародыша. Доля "активных" в этом отношении атомов учитывалась параметром  $P_v$ , значение которого лежит в интервале от 1 до 10<sup>-4</sup>.

В последующих работах [144—146] предпочтительным считается перерастворение газа из ВЗП путем полного разрушения малых пузырьков (диаметром до 140—340 Å) одним осколком деления и гетерогенное зарождение ВЗП на треках деления. Сразу после прохождения осколка деления весь осколочный газ в объеме трека находится в растворе, а топливо обогащено вакансиями. В объеме трека образуются малые вакансионные кластеры в количестве для объема трека, равном  $N \approx 10^{19}$  см<sup>-3</sup> (около  $6 \cdot 10^3$  кластеров на один трек). Одиночные атомы газа диффундируют в объеме трека к вакансионным кластерам и образуют зародыши ВЗП. Время возбужденного состояния объема трека  $\tau$  намного меньше промежутка времени  $\tau^*$  между прохождением осколков деления в одном и том же объеме топлива:  $\tau \ll \tau^*$ . Принимается  $\tau = 10^{-2}$  с. Так как рассматривается только гетерогенное зарождение ВЗП на треках, то параметр  $P_v$  физически представляет собой долю топлива, находящегося в возбужденном состоянии (богатом вакансиями):  $P_v \sim \tau/\tau^*$ . Для формального описания перерастворения используется величина  $\eta$ , определенная (2.4):  $\eta \sim 1/\tau^*$ .

Одиночные атомы газа в объеме зерна диффундируют в концентрационном поле на границу, неподвижные ВЗП служат ловушками для мигрирующих атомов газа. Поведение газа в зерне при этом описыва-

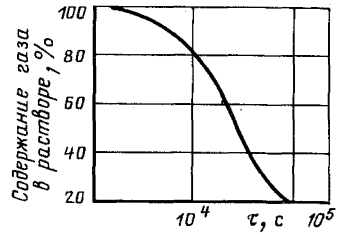
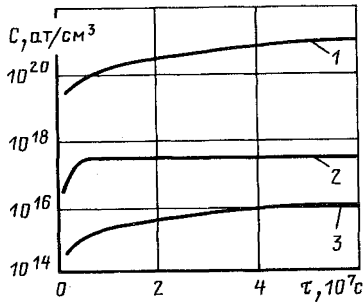


Рис. 4.3. Зависимость концентрации газа в УС от времени облучения [142] (модельный расчет):

1 - в ВЗП; 2 - в МЗП; 3 - в твердом растворе

Рис. 4.4. Зависимость количества газа, оставшегося в растворе, от времени облучения [145] [модельный расчет при  $D = 3,3 \cdot 10^{-12} \text{ см}^2/\text{с}$ ;  $F_d = 7,5 \cdot 10^{13} \text{ дел}/(\text{см}^3 \times \text{с})$ ;  $\eta = 1/\tau^* = 5 \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1}$ ;  $P_B = \tau/\tau^* = 10^{-4}$ ]

ется системой уравнений типа (2.16) с добавлением члена  $K C_{\text{общ}}$ , отражающего диффузию атомов газа в объеме трека и их захват вакансионными кластерами, где  $C_{\text{общ}}$  - общее содержание газа в объеме трека, а

$$K = \alpha D_s N V_{\text{тр}} F_d,$$

где  $\alpha$  - коэффициент захвата атомов газа вакансионными кластерами;  $N$  - число кластеров;  $V_{\text{тр}}$  - объем трека;  $D_s$  - коэффициент диффузии атомов газа внутри объема трека, обогащенного вакансиями.  $D_s$  может быть оценен на основании измерений радиационно-активируемого коэффициента диффузии  $D_{\text{р.а}}$  (см. § 2.3):

$$D_s = D_{\text{р.а}}/\tau\eta.$$

Тогда, имея в виду, что  $\eta = V_{\text{тр}} F_d$ , получаем  $K = \alpha N D_{\text{р.а}}/\tau$ . На рис. 4.4 приведена расчетная зависимость концентрации растворенного в зерне газа от времени облучения.

В работе [4], опирающейся на положения [147, 148], подробно рассмотрено поведение ГПД, вышедших на границы зерен. Граница зерна  $\text{UO}_2$  в соответствии с моделью [6] состоит из 14 граней, принадлежащих двум соседним зернам, 36 линейных границ, образуемых тремя зернами, и 24 "углов", образуемых четырьмя зернами. Форма пограничных пузырей зависит от типа границы, на которой они располагаются.

Выходящий из зерна газ частично сразу попадает в соответствующие граничные пузыри, а частично диффундирует по границе и после этого захватывается пузырем. Рост объема пузыря происходит путем поглощения вакансий, которые мигрируют вдоль границы зерна под воздей-

ствием разности химических потенциалов "вдали" от пузыря и в области, непосредственно примыкающей к его поверхности. В отсутствие внешнего давления химический потенциал для пузыря на грани описывается выражением

$$\mu_f = \Omega(2\gamma \sin\theta/R - p), \quad (4.1)$$

где первый член в круглых скобках означает лапласово давление, а  $p$  — давление газа в пузыре. В общем случае, как показано в § 2.2, возможны два процесса: приток вакансий к пузырю ( $p > 2\gamma \sin\theta/R$ ), при этом происходит распухание топлива, или эмиссия вакансий из пузыря ( $p < 2\gamma \sin\theta/R$ ), в этом случае имеет место спекание топлива.

Приток газа из зерна вызывает увеличение объема пузырей и их слияние. На плоских границах пузыри концентрацией  $C_{\text{пуз}}$ ,  $\text{м}^{-2}$ , определяемой в [4] по зависимости, близкой к экспериментальной

$$C_{\text{пуз}} = 1928 \exp(3,312 \cdot 10^4/T),$$

сливаясь между собой, образуют цепочки связанных пузырей. На линейных границах пузыри, сливаясь между собой, образуют тоннели, которые могут соединяться с внешней поверхностью топливного образца. Слияние цепочки пузырей, образовавшихся на грани, с тоннелем приводит к выходу газа из пузырей, понижению давления  $p$  и изменению химического потенциала в соответствии с (4.1), что обуславливает возможность спекания цепочки с разбиением ее на отдельные пузыри.

Расчетные модели по поведению газа внутри зерна и на его границах объединены в единую программу OGRES (Великобритания), использование которой позволяет определять выход газа из топлива и его распухание за счет твердых продуктов деления, газа в зернах и на границах [4]. На рис. 4.5 приведены результаты расчетов по этой программе распухания топлива в зависимости от выгорания, представленные в виде зависимостей для отдельных компонентов.

Как видно из рисунка, твердое распухание понижается с ростом температуры в основном за счет выхода летучего цезия (рис. 4.5, а). Распухание за счет пузырей на гранях возрастает с увеличением температуры из-за снижения концентрации пузырей и выходит на насыщение при выгорании 1–2% (рис. 4.5, б). Распухание от накопления газа в ВЗП вплоть до температур 1750 К уменьшается за счет снижения концентрации ВЗП и увеличения выхода газа наружу. Однако при дальнейшем росте температуры (более 1750 К) распухание будет увеличиваться из-за роста пузырей (рис. 4.5, в). Распухание от накопления газа в пузырях на линейных границах зерен выходит на насыщение (для данных условий оно составляет около 5%), когда пузыри образуют устойчивые тоннели. Причем время образования тоннелей тем меньше, чем выше температура (рис. 4.5, в). Аналогичные представления о поведении ГПД на границах изложены в [149].

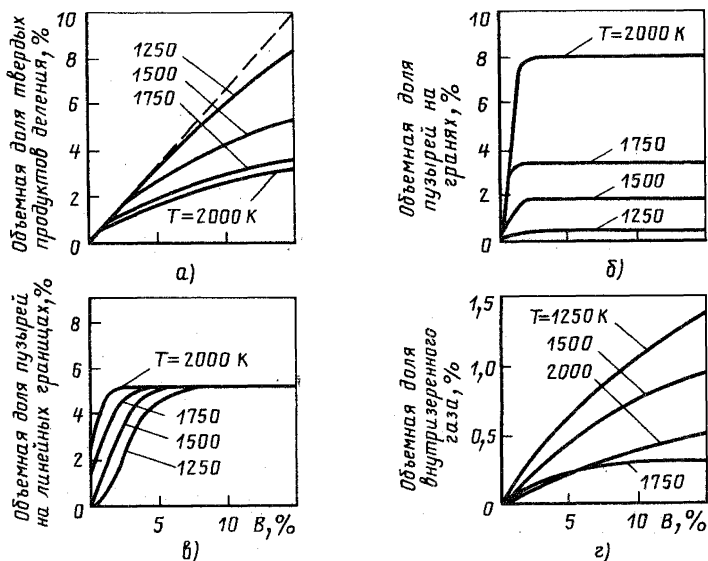


Рис. 4.5. Основные составляющие распухания топлива при  $F_{\text{д}} \approx 7,5 \cdot 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> × с); давление газа вне топлива 1 МПа; твердом распухании (исключая цезий) 0,19% на 1% выгорания; распухании от цезия 0,47% на 1% выгорания; размере зерна при температурах 1250–1500, 1750 и 2000 К соответственно 10, 23 и 32 мкм

*Модели на основе миграции пузырей к границам зерен.* Типичная модель BUBL, построенная на движении пузырей в температурном поле [13], разработана Вернером и Николсом. Атомы газа, рождаясь внутри объемов топлива, ограниченных дислокациями, сразу же взаимодействуют с дислокациями, образуя на них пузыри или присоединяясь к уже существующим. Пузыри могут мигрировать вдоль дислокаций и объединяться. Перерастворение в модели не учитывается. Пузыри на дислокациях, достигшие размера  $R_{\text{п}} \approx 500 \text{ \AA}$  (см. § 1.3), отрываются от них и мигрируют с коэффициентом диффузии  $D_{\text{п}}$  в поле температуры к границе зерна со скоростью, определяемой (1.11). На границе пузыри задерживаются до тех пор, пока в результате слияния не достигнут критического для границы размера ( $R_{\text{п}} \approx 5 \cdot 10^3 \text{ \AA}$ ), после чего отрываются и мигрируют в направлении подъема температуры до ближайшей трещины в топливе, по которой и выходят наружу. Трещины не связаны с границами зерен, и расстояние между ними варьируется в расчетах произвольно от 0 до 200 мкм. При этом распухание топлива определяется объемом пузырей, находящихся на дислокациях, движущихся от дислокаций к границам, накапливающихся на границах и движущихся от границы к трещинам.

При увеличении времени облучения (а следовательно, выгорания) сначала происходит увеличение объемов пузырей на каждом из четырех этапов их развития и движения, что приводит к росту распухания. Затем потоки на каждом этапе приходят в динамическое равновесие и газовое распухание прекращается. Так, при температуре 1500 °С насыщение газового распухания наблюдается при  $B \approx 5 \cdot 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>. С увеличением температуры насыщение наступает при меньших выгораниях (рис. 4.6).

Большое влияние на выход ГПД и распухание оказывают структурные факторы: число дислокаций, размер зерен, расстояние между трещинами. Эти факторы особенно сильно влияют при средних температурах (1300–1500 °С), при температурах выше 1600 °С скорость движения пузырей возрастает настолько, что структура практически уже не оказывает влияния. Значительна также роль градиента температуры, с увеличением которого растет скорость транзитных пузырей и уменьшаются критические размеры пузырей, удерживаемых дислокациями и границами зерен. Одним из недостатков этой модели является отсутствие определения физической сущности трещин, которые являются абсолютными стоками для ГПД.

Модель [150] также предполагает выход ГПД на границы путем концентрационной миграции пузырей с условным коэффициентом диффузии  $D_n = A/R_n^3$ , определенным из экспериментальными данными по движению малых пузырей путем поверхностной диффузии (см. § 1.3). Пузыри с  $R_n \leq 25$  Å могут быть полностью разрушены одним осколком деления и наряду с одиночными атомами газа входят в категорию растворенного газа. Концентрация растворенного газа с увеличением выгорания выходит на насыщение, которое зависит от параметров облучения. Выражение для определения равновесной концентрации  $C_c$  ГПД в растворе получено на основе решения уравнений баланса, аналогичных (2.16), в отсутствие члена  $D\nabla^2 C$ , учитывающего диффузию газов на границы, в виде

$$C_c = \frac{4,6 \cdot 10^{-2} \eta n_c^{5/3} \nu^{2/3}}{A}, \quad (4.2)$$

где  $n_c$  — количество газа в ВЗП критическим радиусом 25 Å ( $n_c \approx 700$  атомов газа);  $\nu$  — постоянная Ван-дер-Ваальса;  $A$ , см<sup>5</sup>/с, определяется из (2.12):

$$A = D_n R_n^3 = 1,19 \cdot 10^{-22} \exp(-100\,000/RT).$$

На рис. 4.7 представлена температурная зависимость  $C_c$ , рассчитанная по (4.2) для  $\eta \approx 10^{-4}$  с<sup>-1</sup>. В соответствии с модельными расчетами газ в ВЗП и в растворе при температурах выше 1400 °С достигает насыщения в интервале времен  $10^7 - 10^8$  с. При температуре 1200 °С насыщение не наступает вплоть до времени  $10^9$  с. Граница зерна служит для

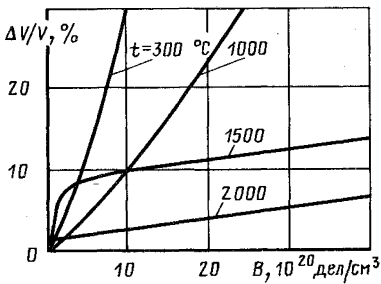


Рис. 4.6. Зависимость распухания  $UO_2$  от выгорания [13] (модельный расчет при  $dt/dx = 1000$  °C/см;  $p = 13,8$  МПа;  $L_{\text{зер}} = 10$  мкм; расстояние между трещинами 100 мкм)

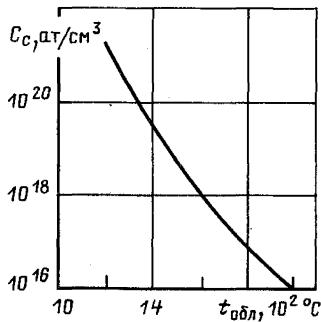


Рис. 4.7. Зависимость равновесной концентрации ГПД в растворе от температуры [150] (модельный расчет) при  $\eta = 10^{-4}$  с<sup>-1</sup>

пузырей глубоким стоком, в процессе движения к ней пузыри могут коагулировать. На плоских границах пузыри мигрируют в концентрационном поле, коагулируют и подвержены перерастоврению. При этом на границе образуется насыщенный твердый раствор.

Для граничных пузырей чечевицеобразной формы глубоким стоком является ребро зерна, и на него идет постоянный выход пузырей с коэффициентом диффузии  $D_{\text{п.гр}}$ . При заполнении 78% площади грани пузыри образуют сеть взаимосвязанных каналов, газ полностью перетекает на ребро, грань очищается и процесс ее заполнения повторяется снова.

Для пузырей, находящихся на ребре зерна, глубоким стоком служит пересечение ребер (угол), куда пузыри из ребра поступают постоянно путем миграции, при заполнении пузырями всего ребра газ течет по каналу. Распухание топлива определяется объемом пузырей, находящихся на всех рассмотренных здесь этапах их движения. После того как распухание топлива достигает 5%, ребра и углы образуют сеть взаимосвязанных каналов, по которым газ отводится наружу. В модели предусмотрена возможность увеличения диаметра тоннелей, если поток атомов газа превосходит поток вакансий при спекании, что вызывает дальнейшее распухание топлива, но уже с меньшей скоростью. Если процесс спекания превалирует, то система тоннелей остается неизменной.

На рис. 4.8 представлен пример модельного расчета распухания в зависимости от выгорания топлива при заданном конкретном наборе параметров облучения. На первом этапе распухание протекает с большой скоростью за счет накопления газа в ВЗП и МЗП. При  $B = 3 \times 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup> образуется система тоннелей и скорость распухания

становится постоянной и меньшей. В момент образования тоннелей начинается выход ГПД.

В разработанной Михлиным и Чкуасели модели газовыделения и распухания топлива [92] развитие газовой пористости обусловлено процессами столкновения и слияния движущихся газовых пузырей с учетом рождения новых пузырей, имеющих одинаковый размер. Урупнение исходных пузырей, зарождающихся в бездефектной части зерна, и распределение их по размерам связываются в модели с двумя процессами: миграцией пузырей под действием температурного градиента и с их случайным блужданием. Миграция рассматривается по механизмам объемной и поверхностной диффузии, при этом скорость перемещения поры радиуса  $r$  представляется в виде

$$v(r) = [D_s(r) + D_v(r)] \frac{4\pi r^3}{3\Omega} \frac{Q^*}{kT^2} (dT/dx)_{\text{пора}},$$

где  $Q^*$  — тепло переноса, принятое одинаковым для поверхностной и объемной диффузии;  $D_v(r)$  и  $D_s(r)$  — коэффициенты объемной и поверхностной диффузии поры. В модели использованы представления, в соответствии с которыми зависимость подвижности пузырей по механизму поверхностной диффузии от их размера имеет немонотонный характер с глубоким минимумом при радиусах пузырей  $10 \text{ \AA}$  [151].

В процессе миграции пузыри могут захватываться дислокациями, границами и ребрами зерен, которые служат местами накопления и более интенсивного, чем в бездефектной части зерна, роста пузырей. Изменение концентрации пузырей в каждой из выделенных структурных областей обусловлено их взаимными столкновениями в данной области и переходами из одной области в другую. Причем, помимо захвата пузырей дислокациями, границами и ребрами зерен, допускается возможность перехода пузырей в бездефектную область при достижении ими некоторого предельного для данной области размера  $R_{\text{кр}}^i$ , при этом  $R_{\text{кр}}^{\text{дискл}} < R_{\text{кр}}^{\text{гр}} < R_{\text{кр}}^{\text{реб}}$ . Срыв пузырей с ребер не рассматривается, в предположении, что столь крупных размеров пузыри обычно не достигают. Накопление пузырей на ребрах идет быстрее, чем на границах зерен, так как на ребра пузыри поступают не только из бездефектной области, но и с границ. С ростом концентрации и размеров пузырей на ребрах и гранях может возникнуть ситуация, когда объединение пузырей идет быстрее их сферизации, что приводит к формированию сети каналов, по которым газ выходит из топлива. Канал считается образовавшимся, когда вся длина ребра заполняется порами или грань сплошь покрывается пузырями в виде простой квадратной решетки. С момента образования каналов приходящие на ребра (границы) пузыри выделяют содержащийся в них газ в каналы, и рассмотрение столкновений пузырей в этих областях прекращается. Каналы считаются цилиндрическими, диаметр их в дальнейшем может изменяться за счет притока

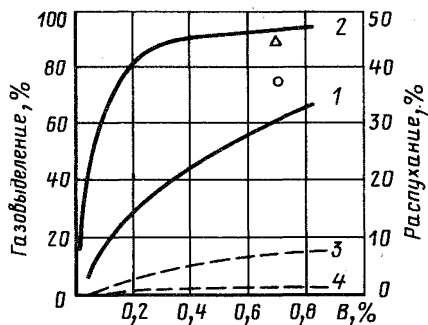
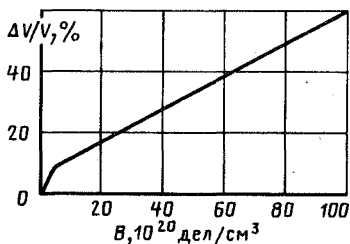


Рис. 4.8. Зависимость распухания  $\text{UO}_2$  от выгорания [150] при  $t_{\text{обл}} = 1200^\circ\text{C}$ ;  $F_{\text{д}} = 10^{13}$  дел/( $\text{см}^3 \cdot \text{с}$ );  $R_{\text{зер}} = 10$  мкм;  $dt/dx = 10^3$   $^\circ\text{C}/\text{см}$ ;  $p_{\text{T}} \approx 14$  МПа

Рис. 4.9. Расчетные зависимости газовыделения (сплошные линии) и распухания (штриховые линии) и экспериментальная зависимость газовыделения (символы [111]) от выгорания:

1, 3,  $\circ$  -  $t = 1500^\circ\text{C}$ ; 2, 4,  $\Delta$  -  $t = 1650^\circ\text{C}$

вакансий, поступающих в канал с пузырями, а также испарения их с поверхности канала в матрицу топлива. В модели учитывается радиационное перерастворение газа из пузыря в соответствии с [44].

Распухание в модели определяется на основе вычисления концентрации и размера пузырей в каждой из рассматриваемых областей. На рис. 4.9 показаны расчетные зависимости распухания и газовыделения из топлива от выгорания из [92]. Из рисунка видно, что с ростом температуры газовыделение начинается раньше и быстрее выходит на постоянный уровень, когда практически весь рождающийся газ выносится пузырями в каналы. Распухание при этом также выходит на насыщение, уровень которого тем меньше, чем выше температура.

Модель дает возможность описания достаточно тонких эффектов развития газовой пористости. На рис. 4.10 показаны гистограммы распределения по размерам внутризеренной пористости. Видно удовлетворительное качественное согласие с данными электронной микроскопии.

Рассмотренные теоретические модели, направленные на детальное рассмотрение тонких механизмов поведения ГПД в облученном топливе, включают, как правило, большое число априорных параметров, обоснование которых затруднено как теоретически, так и экспериментально. К их числу можно отнести такие исходныесылки, как число атомов в зародыше ВЗП, долю топлива в возбужденном состоянии (богатого вакансиями) при прохождении осколка деления, коэффициенты диффузии различного типа и другие. Так как эти модели отражают только частные физические процессы и не охватывают поведения топлива в твэле в целом, затруднительно использовать их для интер-



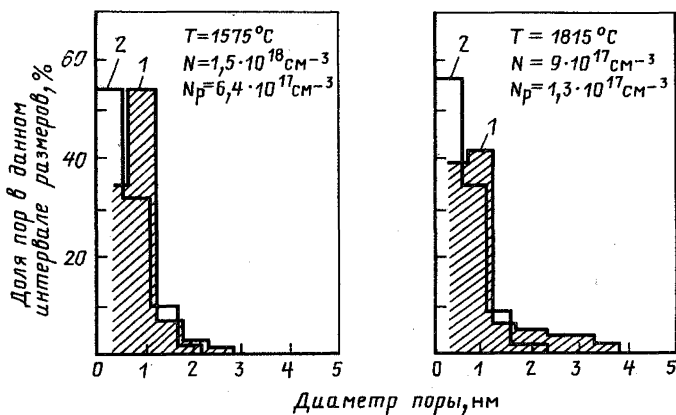


Рис. 4.10. Распределение пор по размерам:

1 – эксперимент [152]; 2 – расчет ( $N$  – измеренное полное число пор,  $N_p$  – расчетное число пор)

претации интегральных экспериментов по радиационному поведению твэла и применять эти результаты для уточнения теоретических моделей. Вместе с тем они оказываются полезными для анализа более детального набора экспериментальных данных, полученных при испытаниях топлива. Так, используя понятие о перерастворении ГПД, находящихся в ВЗП, удалось объяснить характер экспериментально наблюдаемого изменения коэффициента диффузии с выгоранием; данные по накоплению ГПД во внутризеренных пузырьках и их выходу из топлива подтвердили схему накопления газообразных продуктов деления в ВЗП, МЗП, образования каналов и их динамическое поведение и т. д.

Кроме того, теоретические модели ставят ряд вопросов по исходным механизмам поведения газовых включений в топливе, требующих углубленного как теоретического, так и экспериментального фундаментального изучения поведения твердого тела.

**Инженерные модели.** Эти модели достаточно многочисленны и носят прикладной характер. Для примера рассмотрим некоторые из них.

1. В [85, 153] определяется кинетика НДС твэлов различного типа, работающих в реальных условиях ядерного реактора, с учетом нестационарных режимов, перекосов температурных и нейтронных полей. В моделях рассматриваются механизмы деформации топлива и оболочек, представленные в общем виде формулой (1.15).

Для описания распухания топлива вследствие накопления ГПД используется модель квазистатических газовых пор, в соответствии с

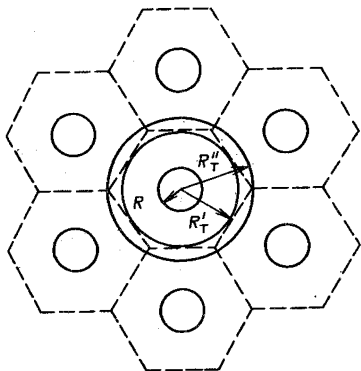


Рис. 4.11. Схема сферических ячеек с газовыми порами:

$R$  — радиус поры;  $R_T$  — радиус сферы, эквивалентной полиэдрической элементарной ячейке ( $R_T'$ ,  $R_T''$  — крайние оценки размера радиуса)

которой объем топлива условно разделяется на регулярно расположенные элементарные ячейки, содержащие по одной поре (рис. 4.11).

В модели квазистатических газовых пор используются следующие предположения:

все поры сферические, имеют одинаковый размер и равномерно распределены по объему топлива;

ГПД, образующиеся в материале элементарной ячейки, могут диффундировать только в свою пору, так что во всех порах накапливается одинаковое количество газа;

подвижность твердых продуктов деления невелика и накопление их, а также растворенных в решетке ГПД вызывает однородное изменение объема делящейся композиции в каждой ячейке;

в однородном поле температур и делений все ячейки деформируются одинаково;

на поверхности сферы объемом, равным объему полиэдрической элементарной ячейки, содержащей одну пору, приложено лишь гидростатическое давление  $p_T$ , которым нагружено топливо.

В соответствии с рассматриваемой моделью распухание топлива определяется деформацией толстостенной сферы, нагруженной внутренним давлением ГПД в замкнутой поре  $p_B$  и внешним гидростатическим давлением, равным компонентам шарового тензора макронапряжений в рассматриваемой точке топливного сердечника:

$$p_T = -(\sigma_x + \sigma_y + \sigma_z)/3. \quad (4.3)$$

Внутреннее давление  $p_B$  определяется из уравнения состояния газов в закрытых порах

$$p_B = \frac{T}{273} \left\{ S + \epsilon_0 - (1 - \epsilon_0) S_T - \int_0^T \beta_G(\tau') d\tau' \sum_i V_{0i} \varphi_i \right\}^{-1} \times \\ \times \int_0^T \beta_G(\tau') d\tau' \sum_i V_i \varphi_i, \quad (4.4)$$

где  $S$  — относительное изменение объема топлива вследствие радиационных воздействий, вызываемое распуханием;  $\beta_G(\tau)$  — скорость выгорания делящегося материала в единице объема, кг/(м<sup>3</sup> · ч);  $V_i$  и  $V_{0i}$  — нормальный объем и объем при температуре  $T=0$  К  $i$ -го изотопа, образующегося при делении 1 кг материала, м<sup>3</sup>/кг;  $\varphi_i$  — доля  $i$ -го газа, вышедшего в закрытые поры к моменту времени  $\tau$ ;  $\epsilon_0$  — исходная пористость топлива. Часть газа остается в растворе и учитывается при твердом распухании

$$S_T = \int_0^{\tau} \beta_G(\tau') d\tau' (V_{ТВ} + \sum_i V_{0i} \lambda_i) (1 - \epsilon_0)^{-1}, \quad (4.5)$$

где  $V_{ТВ}$  — объем твердых продуктов деления, образующихся при делении 1 кг <sup>235</sup>U в 1 м<sup>3</sup> топлива, м<sup>3</sup>;  $\lambda_i = 1 - \varphi_i - \psi_i$  — доля  $i$ -го газа, оставшегося в топливе к моменту  $\tau$ , а часть газа  $\psi_i$  выходит под оболочку и не дает вклада в распухание. Объемы  $V_i$ ,  $V_{0i}$  и  $V_{ТВ}$  определяются по известным выходам различных элементов на один акт деления. При этом могут рассматриваться цепочки нестабильных изотопов.

В такой постановке на основе решения геометрически нелинейной задачи для вязкоупругой стадии распухания толстостенной сферы, нагруженной давлениями  $p_r$ ,  $p_b$ , получено выражение для скорости распухания

$$\frac{dS}{d\tau} = \frac{1+S}{1+S_T} \frac{dS_T}{d\tau} + \zeta(1+S) \times \left\{ \frac{p_b - p_r + (2\gamma/R)(\epsilon_0^* \Gamma)^{1/3}}{[(1+S)\Gamma]^{1/\nu} - 1} \right\}^{\nu}, \quad (4.6)$$

где  $\Gamma = [1+S - (1+S_T)(1 - \epsilon_0^*)]^{-1}$ ;  $\zeta = 1,5^{\nu+1} A \nu^{-\nu}$ . Величины  $A$  и  $\nu$  определяют ползучесть топливного материала согласно зависимости  $\dot{\epsilon} = A \sigma^{\nu}$ ; множитель  $2\gamma/R$  учитывает силы поверхностного натяжения на поверхности пор;  $\epsilon_0^* = (1 \div 1,35)\epsilon_0$  — некая условная начальная пористость топлива. Уравнения (4.3) — (4.6) с начальным условием  $S = S_0$  при  $\tau = \tau_0$  определяют распухание топлива с учетом сдерживающего влияния оболочки.

Для определения деформации конкретных твэлов по этой модели в качестве исходных данных в расчет закладываются доли ГПД, выходящих в замкнутые поры  $\varphi_i$ , зависящие от времени (выгорания) и температуры, которые обычно определяются экспериментально. Размер газовых пузырей принимается равным характерному размеру исходных пор в топливе. Радиус элементарной ячейки топлива определяется соотношением

$$(R/R_T)^3 = 1,35\epsilon_0^*.$$

Изменение объема ячейки в модели может происходить вследствие ползучести или пластической деформации.

Принятые в модели приближения об отсутствии миграции газа за пределы ячейки и перестройки структуры топлива, влияющей на выход газа, ограничивают использование этой модели для металлического, дисперсионного и карбидного топлив при небольших температурных градиентах. На рис. 4.12 в качестве примера приведена зависимость скорости распухания от температуры облучения сплава U + 10% Mo из [85]. Как видно из рисунка, результаты расчетов и экспериментальные данные удовлетворительно согласуются как в области невысоких ( $t < 600$  °C) температур, где основной вклад дает твердое распухание, так и в области повышенных температур ( $t > 600$  °C), где существенную роль играет газовое распухание. Однако такой подход оказывается совершенно неприменимым к сердечникам из диоксида урана при значительных градиентах и высокой температуре, когда реализуется процесс миграции газа.

2. Теория квазистатических газовых пор применительно к инженерному моделированию распухания низкотемпературных (до 500–600 °C) дисперсионных топливных композиций получила развитие в [154, 155]. Для различных условий работы твэла с дисперсионным топливом по аналогии с [85] рассматривается расчет распухания топливной композиции по двум моделям:

гранулы делящегося вещества плотно сцеплены с материалом матрицы, не теряют сплошности, и газовыделение происходит в поры гранул (модель закрытых пор);

в результате теплосмен при нестационарном режиме работы гранулы отслаиваются от матрицы и образуют сферические полости (модель открытых пор). Газовыделение при этом происходит в закрытые и открытые поры.

Для расчета по первой модели в объеме топливной композиции выделяется макроячейка (гранула с окружающим ее материалом матрицы), такая чтобы исходные объемные доли пор  $\epsilon_0$ , делящегося материала  $\gamma_0$  и матрицы  $(1 - \epsilon_0 - \gamma_0)$  были бы такими же, как и во всем рассматриваемом объеме. На основе выражения для нормального объема ГПД, образующихся при выгорании 1% атомов топлива, записывается выражение для газового распухания  $S_T$  топливной композиции, а также твердого распухания  $S_{T.K}$  топливной композиции и самих топливных зерен  $S_{T.з}$ . Решая задачу о деформировании макроячейки (одной поры с окружающим ее материалом гранулы) в виде толстостенной сферы с учетом полученных выражений для составляющих распухания, получают значения распухания  $S$ , перемещения, деформации и напряжений в каждой точке по радиусу микро- и макроячеек. Объем макроячейки выбирается так, чтобы соотношение объемов поры и материала гранулы было таким же, как и для всей гранулы  $\epsilon_0/\gamma_0$ .

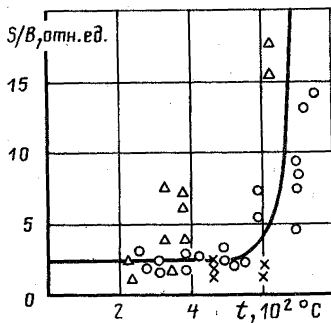


Рис. 4.12. Сравнение расчетных (линия) и экспериментальных (символы) данных по скорости распухания ( $S/B$ ) сплава U + 10% Mo:

○ – горячекатаный образец; × – прессованный образец без покрытия; △ – образец, прессованный с покрытием ( $S\%/B\%$  – отношение распухания к выгоранию)

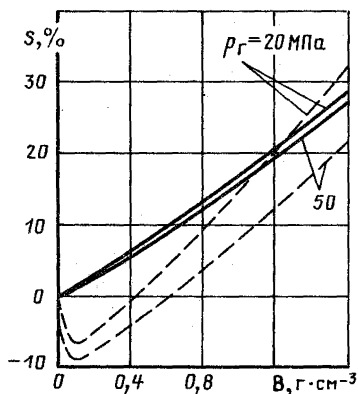


Рис. 4.13. Зависимость общего распухания топливной композиции  $S$  от выгорания  $B$  при гранулах, плотно сцепленных с матрицей (сплошные линии), и при отслоении гранул от матрицы (штриховые линии) при  $\epsilon_{03} = 0,1$  и  $t = 400^\circ\text{C}$

Задача о распухании в случае когда гранула отслоилась от матрицы, решается аналогично. При этом полное распухание складывается из трех составляющих:

$$S = S_{т.з}(\gamma_0 + \epsilon_{03} + \epsilon_{00}) + S_{т.з} + S_{т.о},$$

где  $S_{т.з}$  – распухание за счет ГПД в закрытых порах;  $S_{т.о}$  – распухание за счет ГПД, собирающихся в открытых порах и трещинах;  $\epsilon_{03}$  и  $\epsilon_{00}$  – начальные объемные доли закрытых и открытых пор.

В качестве примера на рис. 4.13 приведены зависимости общего распухания дисперсионной топливной композиции от выгорания, рассчитанные по программе RASP2 [155] по двум рассмотренным моделям. С увеличением гидростатического давления распухание топлива с отслоившимися гранулами  $\text{UO}_2$  будет меньше, чем при их сцеплении с матрицей, а при малых выгораниях оно имеет отрицательное значение. Это связано с увеличением плотности композиции за счет уменьшения объема открытых пор в начальный период.

На основе данных, рассчитанных по программе RASP2, получены формулы для оценок распухания топливных композиций на основе оксидного топлива, диспергированного в вязкой матрице:

гранулы  $UO_2$  плотно сцеплены с матрицей

$$S = \frac{3b_v(\gamma_0 + \epsilon_{03})B}{\rho\gamma_0} + S_{Г.з};$$

гранулы отслоены от матрицы

$$S = \frac{3b_v(\gamma_0 + \epsilon_{03})B}{\rho\gamma_0} + S_{Г.з} + S_{Г.о},$$

где  $b_v$  — коэффициент, для  $UO_2$  равный 0,5;  $B$  — выгорание, в данных соотношениях представленное в  $г/см^3$ ;  $\rho$  — плотность делящегося вещества,  $г \cdot см^{-3}$ . Пределы применимости этих соотношений ограничены по температуре от 200 до 500 °С, по гидростатическому давлению от 10 до 80 МПа, по выгоранию от 0 до 1,6  $г/см^3$  и по значениям  $\epsilon_{03}$  и  $\epsilon_{0о}$  — от 0,05 до 0,15. Некоторое представление о выражениях для составляющих распухания  $S_{Г.з}$  и  $S_{Г.о}$  в зависимости от выгорания в указанном диапазоне значений  $\epsilon_{03}$  и  $\epsilon_{0о}$  можно получить из рис. 4.14.

Так же как и прежде, описанный здесь подход становится неудовлетворительным при высоких температурах, когда интенсифицируются процессы миграции ГПД в керамическом топливе.

3. Модель, предложенная в [156] для интерпретации результатов экспериментов по облучению  $UO_2$  в оболочке из W-Re [19], предназначена для высокотемпературных (выше 1200 °С) условий работы. Она базируется на результатах экспериментов по высокотемпературному облучению оксидных топлив в оболочке из W — 26% Re, которые сводятся к следующему:

распухание линейно возрастает с увеличением выгорания, причем скорость распухания определяется главным образом температурой и не зависит от выгорания. Температурная зависимость скорости распухания подчиняется закону Аррениуса;

при повышенных температурах распухание (изменение наружных размеров) не является следствием удержания газа в топливе; даже 100%-й выход газа сопровождается высокими скоростями изменения наружных размеров оболочки;

изменение внешних размеров происходит без уменьшения плотности топлива, фактически имеет место даже уплотнение топлива.

Теоретическое объяснение этих экспериментальных фактов сформулировано на основе работы [111], в соответствии с которой диоксид урана распухает за счет образования малых, относительно неподвижных газовых пузырей, которые концентрируются в периферийном слое топлива, примыкающем непосредственно к оболочке. Эти пузыри объединяются в линзообразные поры, которые мигрируют под воздействием температурного градиента по механизму испарение—конденсация к центру сердечника, очищая топливо от ГПД, образовавшихся в нем пе-

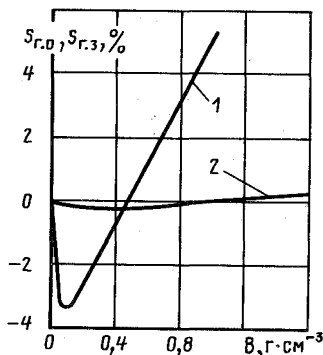


Рис. 4.14. Зависимость газового распухания из-за скопления газов в открытых  $S_{Г.О}$  (1) и закрытых  $S_{Г.З}$  (2) порах от выгорания при  $p_T = 20$  МПа;  $\epsilon_{O_2} = \epsilon_{O_0} = 0,05$ ;  $t = 400$  °С [155] (гранулы  $UO_2$  отслоены от матрицы)

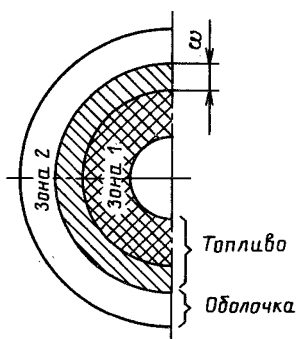


Рис. 4.15. Схема зонного разбиения твэла в модели Бауэра [156]

ред этим. Многократное повторение этого процесса приводит к изменению наружных размеров таблетки в результате суммирования большого числа элементарных актов увеличения объема, вызываемых его переуплотнением.

Построенная на основе этих представлений трехзонная модель твэла показана на рис. 4.15. В соответствии с моделью все рождающиеся в топливе ГПД образуют пузыри, которые затем растут в тонком кольцевом слое топлива толщиной  $\omega$ , примыкающем непосредственно к оболочке. Газовые пузыри, образующиеся в этом слое, подчиняются закону идеальных газов, без учета поверхностного натяжения. В модели этот слой рассматривается как тонкое кольцо, которое нагружает одинаковым давлением  $p$  массивный центральный топливный стержень (зона 1) снаружи и оболочку (зона 2) изнутри. Работа, производимая расширением слоя, расходуется на пластическую деформацию при деформировании топливного сердечника и оболочки:

$$pdV = \sigma_c V_c d\epsilon_c + \sigma_f V_f d\epsilon_f,$$

где  $c$  и  $f$  — индексы, обозначающие оболочку и топливо;  $V_c$  и  $V_f$  — соответственно объем оболочки и топлива;  $\epsilon$  — деформация ползучести материалов оболочки и топлива, скорость которой при малых напряжениях описывается линейной зависимостью  $\dot{\epsilon} = K\sigma$ , известной из экспериментов.

Из решения задачи о деформации тонкостенной оболочки и толсто-стенного топливного цилиндра определяется изменение их геометрии. Толщина слоя  $\omega$ , вообще говоря, довольно произвольная, при конкретных расчетах выбирается из нормировки на экспериментальные ре-

ультаты. На рис. 4.16 [156] показаны результаты расчетов по этой модели температурной зависимости скорости набухания оксидных топливных таблеток наружным диаметром 5,3 мм в оболочках из сплава W-Re в сопоставлении с экспериментальными данными, полученными при  $F_d \approx 10^{13}$  дел/(см<sup>3</sup> · с). В данном случае выбрана  $\omega = 0,38$  мм.

Согласно модели выход пузырей газа в центральную полость увеличивает плотность топлива, но не оказывает влияния на деформацию оболочки. Кроме того, радиальный градиент температуры при этом не моделируется, а задаются некоторые постоянные усредненные по радиусу значения температур топлива и оболочки. Так, в рассматриваемом примере средняя температура оболочки задавалась на 25 °С выше, чем температура ее поверхности, а средняя температура топлива — на 150 °С выше температуры оболочки.

Недостаточная информация об экспериментах, применительно к которым разрабатывалась модель, а также недостаточная физическая обоснованность ведущего ее положения, об определяющем влиянии на набухание прилегающего к оболочке топливного слоя затрудняет применение модели помимо задачи интерпретации конкретного результата работы [19].

4. В модели газового набухания высокотемпературного оксидного топлива [110, 157] учитываются закономерности его поведения при облучении, основанные на следующих основных механизмах, которые определяют процессы газовыделения и набухания [110]:

основной причиной набухания оксидного топлива при высокой температуре является образование крупных (диаметром более 1 мкм) межзеренных пузырей с низким давлением ГПД в них;

в процессе облучения выход газообразных продуктов деления из тела зерна на границы происходит вследствие диффузии атомов газа, высокая концентрация которых поддерживается радиационным перерастворением из мелких пузырей с высоким давлением;

популяция малоподвижных внутризеренных пузырей при облучении стабилизируется и практически не вносит вклада в газовое набухание топлива;

облучение при высокой температуре изменяет структуру топлива, что влияет на миграцию газа и характер набухания: увеличиваются равноосные зерна, образуются столбчатые зерна в результате движения линзообразных пор и направленной рекристаллизации под действием градиента температуры, происходит переконденсация топлива на внутреннюю поверхность оболочки, а также трансформация системы пор и пузырей в неравномерном температурном поле вследствие накопления газообразных продуктов деления (например, образования взаимосвязанных каналов, перехода закрытой пористости в открытую и т. д.).

Согласно принятой модели (рис. 4.17), в каждый момент времени  $t$  образовавшийся газ находится в матрице топлива в виде пересыщен-



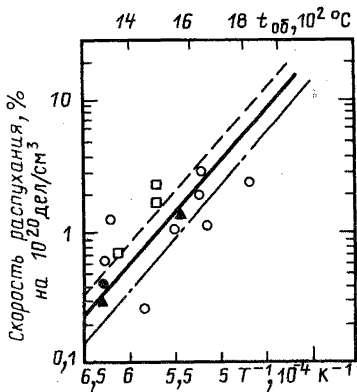


Рис. 4.16. Сравнение расчетных (линии) и измеренных (символы) скоростей распухания оксидного топлива в оболочке из сплава W — 26% Re в зависимости от температуры ее поверхности:

—, ○, ● — толщина оболочки 0,5 мм, диаметр центрального отверстия 2,8 мм; — — —, ▲ — толщина оболочки 1 мм, диаметр центрального отверстия 2,8 мм; - - - - , □ — толщина оболочки 0,5 мм, диаметр центрального отверстия 1,4 мм (○, □ —  $UO_2$ ; ●, ▲ —  $UO_2 - 8\% PuO_2$ )

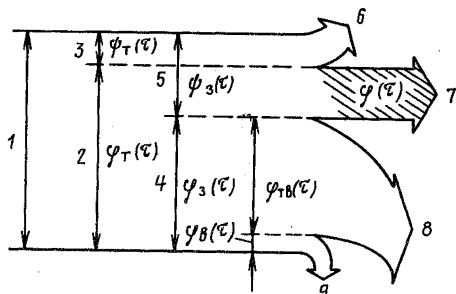


Рис. 4.17. Модель поведения газообразных продуктов деления в оксидном топливе при облучении:

1 — образовавшийся газ; 2, 3 — газ в матрице топлива и вне ее; 4, 5 — газ в зерне и вне его; 6 — газ вне топлива; 7–9 — газ в межзеренных пузырьках, в твердом растворе и внутризеренных пузырьках соответственно

ного твердого раствора в решетке диоксида урана  $\varphi_{ТВ}(\tau)$ , в виде крупных (диаметром более 1 мкм) межзеренных пузырей  $\varphi(\tau)$  и в виде мелких внутризеренных пузырей  $\varphi_{В}(\tau)$ . Предполагается, что доля образовавшегося газа, находящегося вне топливной матрицы, не дает вклада в распухание, а доля газа в межзеренных пузырьках определяется соотношением

$$\varphi(\tau) = \psi_3(\tau) - \psi_T(\tau). \quad (4.7)$$

При этом доля газа  $\psi_3(\tau)$ , диффундирующего из зерна на его границы в концентрационном поле, в соответствии с (2.11) зависит от времени облучения, размера зерна и через коэффициент диффузии — от температуры. Относительная утечка  $\psi_T(\tau)$ , также зависящая от температуры, берется из экспериментов (в частности, в [110] использовались экспериментальные результаты, обработанные по активационной модели [59]). Влияние мелких внутризеренных пузырей с высоким давлением, являющихся ловушками для диффундирующего газа, на выход ГПД из зерна в модели учитывается через эффективный коэффициент диффузии. При этом вкладом ВЗП в распухание топлива пренебрегается.

При описании пространственно-временного деформационного поведения твэла под действием распухающего топлива в условиях сдерживающего влияния оболочки [157] использовано уравнение для связи гидростатического напряжения в топливе  $\sigma_r(\tau)$ , вызванного накоплением ГПД в межзеренных пузырях, с распуханием  $S^r(\tau)$ , в виде

$$\sigma_r(\tau) = \frac{T}{273[S^r(\tau) + \epsilon_0]} \left[ 24,7 \int_0^\tau \beta_G(\tau') d\tau' \varphi(\tau) + \epsilon_0 \right], \quad (4.8)$$

где  $T$  – локальная температура топлива, К;  $\beta_G(\tau)$  – скорость выгорания, г U/(см<sup>3</sup> · ч);  $\epsilon_0$  – исходная пористость топлива (предполагается, что поры заполнены технологическим газом, находящимся при нормальных условиях). Сечение топливного стержня разбивается на несколько кольцевых слоев, имеющих между собой прочное сцепление и характеризующихся индивидуальными значениями свойств. Такой подход позволяет учитывать особенности пространственного (по радиусу сердечника) энергораспределения, температуры и структуры топливного сердечника. Оболочка твэла жестко сцеплена с топливом (контактная модель) и имеет достаточно малую толщину  $\delta \ll R_{\text{ТВэл}}$ .

Из решения системы уравнений, описывающих выход газа на границы зерна и напряженно-деформированное состояние твэла, получают: значение деформации оболочки, изменение плотности топлива (распухание) суммарное и отдельных слоев, деформацию центрального отверстия.

На рис. 4.18 [110] приведены расчетная кривая и экспериментальное полученное значение среднего объемного распухания таблетки мелкозернистого ( $L_{\text{зер}} = 10$  мкм) диоксида урана в оболочке после облучения до выгорания приблизительно 0,1% при  $t_{\text{обл}} = 1750$  °С и радиальном градиенте температуры около 200 °С · см<sup>-1</sup>. Видно, что в пределах экспериментальной погрешности, которая составляет приблизительно 10–15%, распухание UO<sub>2</sub> при облучении, полученное расчетным путем, удовлетворительно согласуется с результатами измерений.

5. В разработанной фирмой Belgonucleaire программе COMETHE III [82, 139] для анализа ресурсного поведения твэлов с керамическим топливом в тепловых легководных реакторах и реакторах на быстрых

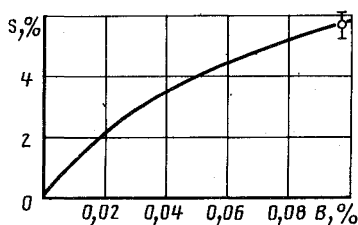


Рис. 4.18. Зависимость среднего объемного распухания образца из UO<sub>2</sub> от выгорания:

— — расчет; ○ — эксперимент

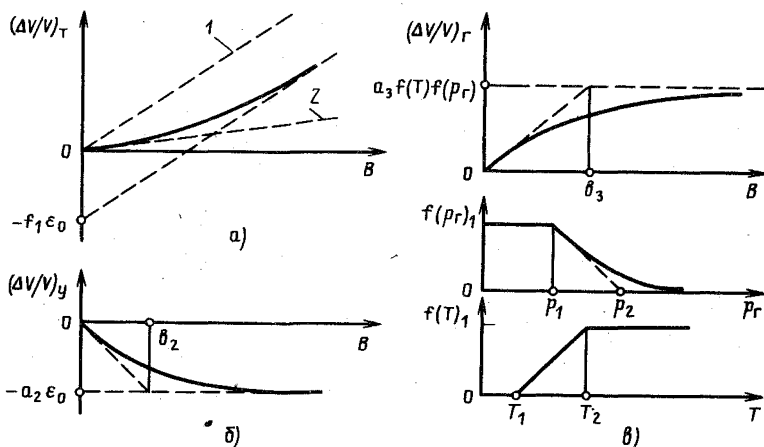


Рис. 4.19. Модель распухания топлива, реализованная в программе COMETHE III [139]

нейтронах моделирование поведения топлива при облучении опирается на современные представления о кинетике и взаимодействии отдельных процессов. Практическая реализация модели осуществляется по пути использования эмпирических зависимостей. Принципы моделирования объемных изменений топлива при облучении, реализованные в программе, схематично показаны на рис. 4.19. Результирующее распухание определяется суммой объемных изменений в результате твердого распухания  $(\Delta V/V)_T$ , уплотнения топлива  $(\Delta V/V)_y$  и его газового распухания  $(\Delta V/V)_r$ :

$$\Delta V/V = (\Delta V/V)_T + (\Delta V/V)_y + (\Delta V/V)_r.$$

а) Распухание от твердых и псевдотвердых продуктов деления рассматривается как линейно зависящее от выгорания  $B$  со скоростью  $k_T$  (кривая 1 на рис. 4.19, а). При низких выгораниях темп твердого распухания существенно снижен (кривая 2 на рис. 4.19, а) из-за того, что часть стабильной пористости  $f_1 \epsilon_0$  ( $\epsilon_0$  — исходная пористость топлива) способна компенсировать объемные изменения матрицы. Для описания динамики твердого распухания в модели используются соотношения:

$$(\Delta V/V)_T = \begin{cases} \frac{k_T}{1 + f_1 \epsilon_0 F'} B, & \text{при малых } B; \\ -f_1 \epsilon_0 + k_T B, & \text{при больших } B, \end{cases}$$

где  $F'$  — некоторая эмпирическая константа, учитывающая влияние размера заполняемых пор, численное значение которой в практических расчетах имеет порядок  $10^2$ . Исходная пористость  $\epsilon_0$  рассматривается как состоящая из двух составляющих: нестабильной ее части  $a_2 \epsilon_0$ , подверженной спеканию (поры спекания), и стабильной  $(1 - a_2) \epsilon_0$ , часть которой  $a_1 (1 - a_2) \epsilon_0 \equiv f_1 \epsilon_0$  способна компенсировать объемные изменения матрицы топлива.

б) Уплотнение топлива при облучении в модели принимается таким, чтобы оно экспоненциально уменьшалось с выгоранием (рис. 4.19, б), а параметры этого процесса  $a_2$  и  $b_2$  получаются из характеристик топлива и специальных экспериментов. В зависимости от характеристик топлива величина  $a_2$  может изменяться в довольно широких пределах: от 0,2 до 0,8. Связь между величинами  $a_1$  и  $a_2$  однозначно устанавливается соотношением

$$a_1 = 1 - \epsilon_{\text{рез}} / [(1 - a_2) \epsilon_0],$$

где  $\epsilon_{\text{рез}}$  — результирующая пористость топлива без учета нестабильной ее части и части, компенсирующей твердое распухание (задается как эмпирическая величина).

в) Газовое распухание топлива описывается эмпирической функцией от выгорания, температуры и гидростатического давления и приводит к увеличению межзеренной пористости. Постепенно возрастающая, она асимптотически стремится к значению, которое определяется температурой, гидростатическим давлением, и соответствует слиянию пузырей на границах зерен (рис. 4.19, в):

$$(\Delta V / V)_{\text{г}}^{\text{ac}} = a_3 f(T) f(P_{\text{г}}).$$

Функция температуры  $f(T)$  задается линейно возрастающей от нуля до единицы (до насыщения) в температурном диапазоне  $T_1 \leq T \leq T_2$ , характерном для зоны выросших равноосных зерен. Предельное распухание для топлива с равноосной структурой в модели обычно задается  $a_3 = 20\%$ , а значения температур:  $T_1 = 1673$  К и  $T_2 = 1973$  К. Гидростатическое давление  $p_{\text{г}}$  выражается суммой внутреннего давления газа и контактного давления между топливом и оболочкой. Выше некоторого порогового значения, обычно задаваемого,  $p_1 = 10$  МПа наступает "горячее прессование", которое развивается до  $p_2 = 20$  МПа и проявляется в сдерживании газового распухания. При этом возможна ситуация, когда гидростатическое давление начнет уменьшать газовую пористость.

Все параметры, для которых здесь приведены типичные значения, оцениваются из экспериментальных результатов или простых моделей, а эмпирическая зависимость для газового распухания используется в виде

$$\frac{d(\Delta V/V)_r}{dB} = k(L_0/L)^{2n} \frac{D^*}{q} (\Delta V/V)_r^{-1}, \quad (4.9)$$

где  $k$  — коэффициент пропорциональности (эмпирическая величина);  $L_0$ ,  $L$  — исходный и текущий размеры равноосного зерна соответственно;  $D^*$  — коэффициент диффузии газа в зерне  $UO_2$ , зависящий от температуры и выгорания;  $q$  — удельная мощность. В этой формуле теоретическое значение показателя степени  $n = 1$  снижено до  $n = 0,5$ , которое лучше описывает экспериментальные результаты. Размер равноосного зерна рассчитывается из [158]

$$dL/d\tau = k_L [1/L - f_L/L_m], \quad (4.10)$$

в котором коэффициент пропорциональности  $k_L$  и предельный размер зерна  $L_m$  зависят от температуры; величина  $f_L$ , равная единице во вне-реакторных условиях, при облучении выражается формулой

$$f_L = 1 + (\Delta V/V)_r/k_f,$$

где  $k_f$  — некоторая константа, лежащая в пределах от 0,5 до 1%.

Предполагается, что используемый в модели кажущийся коэффициент диффузии  $D^*$  учитывает такие процессы, как захват диффундирующего газа различными ловушками типа ВЗП или дефектами кристаллической решетки с возможным перерастворением атомов газа из них, а также насыщение этих временных стоков. Эти явления описываются соотношением

$$D^* = \left( \frac{1}{D_t + \delta R_f} + \frac{1}{e' R_f + \lambda C_p^2 D_t} \right)^{-1}, \quad (4.11)$$

где  $D_t$  — термический коэффициент диффузии ГПД в  $UO_2$ ;  $R_f$  — плотность делений;  $\delta R_f$  — радиационное увеличение коэффициента диффузии;  $e'$  — коэффициент, характеризующий скорость перерастворения и длину диффузионного пути до поглощения;  $C_p^2$  — концентрация рождающихся в зерне ГПД;  $\lambda$  — эмпирический параметр.

Газовыделение из топлива под оболочку рассчитывается по модели эквивалентных сфер, радиус которых определяется из текущего значения открытой пористости, с учетом ее изменения в результате процессов спекания и газового распухания топлива. С момента образования каналов по границам зерен вся пористость считается открытой. Коэффициент диффузии, используемый при расчете газовыделения, также рассматривается в виде (4.11), с тем лишь отличием, что вместо концентрации  $C_p$  в формулу подставляется его накопление в пределах эквивалентной сферы  $C_a$ .

В рассматриваемой модели выход газа из топлива зависит от открытой пористости, обусловленной распуханием, которое, в свою очередь,

зависит от утечки ГПД. Полагают, что такая взаимосвязь позволяет даже при небольшом числе основных соотношений (4.9) – (4.11) с соответствующими выражениями для расчета  $C_p$  и  $C_a$  точнее описывать поведение топлива в твэле, особенно в переходных и аварийных режимах.

Как видно из изложенного, инженерные модели, основанные на экспериментально установленных закономерностях поведения топлива при облучении, удовлетворительно служат целям интерпретации экспериментов, давая количественные оценки конечных инженерных эффектов. Охватывая напряженно-деформированное состояние твэла в целом, эти модели обеспечивают возможность анализа эффективности различных конструкционных и технологических решений, причем наиболее развитые из них позволяют проследивать ресурсные изменения характеристик твэлов с учетом определенной взаимосвязи отдельных параметров топлива и оболочки. Однако узкая нацеленность такого рода моделей на конкретный тип (или даже конструкцию) твэлов, а также наличие, в большинстве случаев, подгоночных или нормировочных параметров не дают понимания механизмов влияния отдельных процессов на распухание топлива в оболочке, без чего невозможны создание прогнозных моделей и разработка принципиально новых подходов к улучшению работоспособности твэлов. Общая для большинства инженерных подходов ограниченность заключается в отсутствии полной физической картины поведения ГПД в облученном топливе с учетом особенностей его структуры, которой по существу и определяется газовое распухание  $UO_2$ .

Влияние инженерных моделей на постановку и объем экспериментальных работ проявляется, главным образом, в некотором сокращении суммарного числа реперных точек, по которым проводится опытная проверка расчетных оценок изучаемого эффекта. Вместе с тем возможность получения количественных оценок вклада отдельных процессов в распухание твэла при интерпретации экспериментов в широком диапазоне варьирования параметров модели позволяет накапливать информацию о взаимосвязи различных факторов, что в совокупности с анализом экспериментального материала в конечном итоге служит лучшему пониманию процессов, протекающих в топливе с оболочкой при облучении.

### 4.3. Примеры расчетного моделирования

**Моделирование эксплуатационных характеристик твэлов энергетических реакторов.** В качестве примера такого моделирования приведем типичные результаты из работ [82, 84, 139, 159–161], где с помощью вычислительной программы COMETHE III-J и некоторых ее модификаций анализировались различные аспекты работоспособности твэлов энергетических реакторов.

Разрабатываемая с 1967 г. фирмой Belgonucleaire и тестируемая на обширном экспериментальном материале эта полномасштабная инженерная модель поведения твэлов с оксидным топливом позволяет рассчитывать в зависимости от времени облучения в нескольких поперечных сечениях по высоте твэла следующие характеристики [82, 139]:

распределения температуры в топливном сердечнике и оболочке; перестройку топлива при облучении (рост зерна, образование центральной полости, профиль пористости), включая трещинообразование;

трехмерное изменение объема сердечника в результате температурного расширения, радиального и осевого распухания, уплотнения топлива, пластических эффектов из-за осевого или радиального сдерживания, заполнения трещин, впадин и центрального отверстия топливом с учетом влияния циклирования мощности;

контактное давление между топливом и оболочкой;

выход газообразных продуктов деления из топлива под оболочку и внутренне давление газовой смеси в твэле;

трехмерные распределения напряжений и деформаций в оболочке с учетом ее теплового расширения, термической и радиационной ползучести;

анизотропную ползучесть циркониевого сплава в зависимости от его структуры;

радиационное распухание стальной оболочки в реакторах на быстрых нейтронах и некоторые другие характеристики.

В дополнение к приведенным в § 3.2 сведениям (см. рис. 3.8, 3.9, 3.12) рассмотрим результаты практической реализации некоторых из перечисленных выше возможностей этой модели.

*Изменение структуры топлива при облучении.* На рис. 4.20 представлены результаты расчетно-экспериментального сопоставления распределений структурных зон, размера равноосных зерен и пористости топлива по радиусу сердечника в нескольких сечениях по длине экспериментального твэла ELP2, облученного в реакторе CEA-Saclay EL-3 [84] (история и параметры облучения для одного из торцевых сечений твэла даны на рис. 4.21). Распределение пористости по радиусу сердечника характеризуется уменьшением ее по сравнению с исходной ( $\epsilon_0 \approx 5\%$ ) на периферии, резким увеличением в направлении к зоне столбчатых зерен и относительно высоким уровнем внутри этой зоны в торцевых сечениях твэла (рис. 4.20, в). Некоторое различие расчетных и опытных данных по пористости в торцевом сечении (сечение 1), для которого характерны относительно малые значения скорости деления и температуры, объясняется дополнительным растрескиванием топлива при охлаждении (измерения проводились после облучения в холодном состоянии). В остальном расчетные результаты обнаруживают хорошее согласие с экспериментальными данными (рис. 4.20, а и б).

Динамика поведения границ структурных зон, радиального зазора и основных параметров облучения для того же торцевого сечения этого

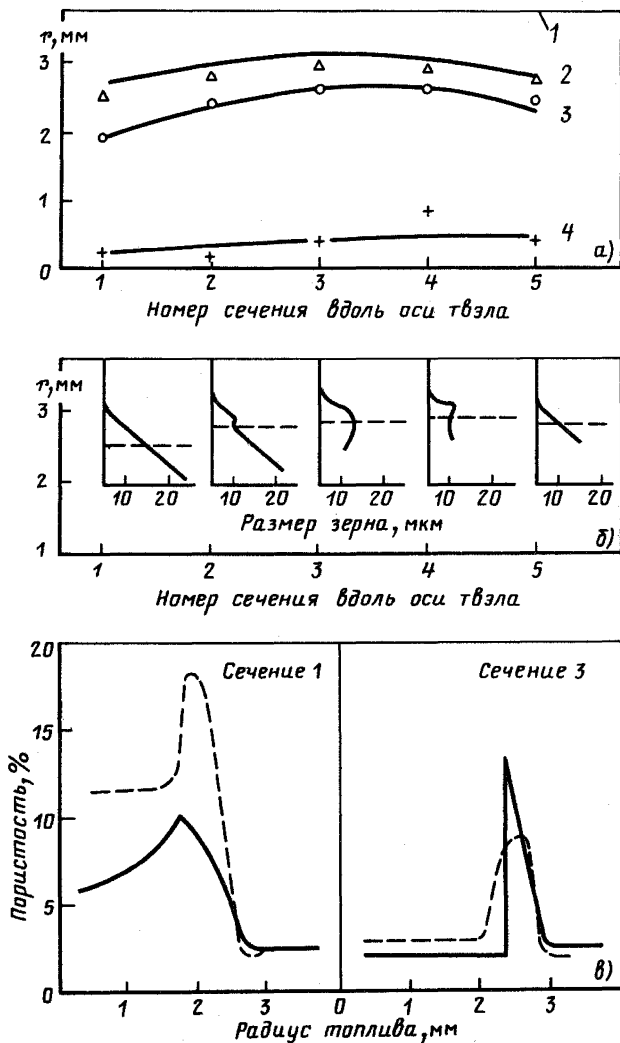


Рис. 4.20. Распределения по радиусу твэла структурных зон (а), размера равноосных зерен (б) и пористости оксидного топлива (в) в различных сечениях по длине после облучения:

— — расчет;  $\Delta$ ,  $\circ$ , +, - - - - эксперимент; 1 — внешняя граница топлива; 2,  $\Delta$  — граница между наружной зоной уплотненной исходной структуры и зоной выросших равноосных зерен; 3,  $\circ$  — граница между зонами выросших равноосных зерен и столбчатой структуры; 4, + — граница осевой полости



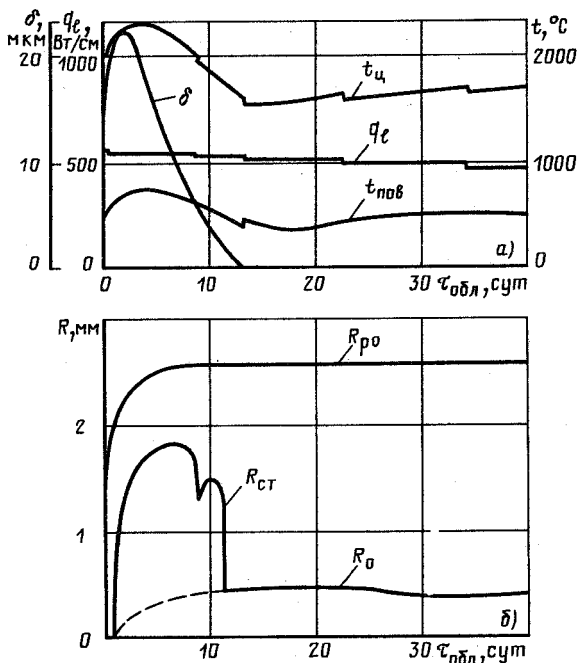


Рис. 4.21. Зависимость рабочих параметров твэла и положения границ структурных зон в топливе от времени облучения:

$\delta$  – радиальный зазор между топливом и оболочкой;  $q_l$  – линейная мощность в твэле;  $t_c$  – температура центра топливного сердечника;  $t_{\text{пов}}$  – температура внешней поверхности топлива;  $R_{\text{po}}$  – радиус границы равноосных зерен размером 10 мкм;  $R_o$  – радиус осевой полости;  $R_{\text{ст}}$  – положение границы роста столчатых зерен [84]

твэла показана на рис. 4.21. Зазор, первоначально раскрывающийся вследствие уплотнения топлива в первые дни облучения, затем уменьшается вследствие преобладающего влияния газового распухания топлива (рис. 4.21, а). Максимум температуры топлива достигается уже через два дня облучения, рост столчатых зерен продолжается до восьмого дня, после чего зона распространяется до центрального отверстия и стабилизируется (рис. 4.21, б). Эволюция внешней границы зоны равноосных зерен размером 10 мкм показывает первоначальный рост этих зерен в течение пяти дней, который затем подавляется присутствием газовых пузырей на границах.

Аналогичные данные получены для твэла ВМО1 с топливом пониженной плотности, облученного в реакторе-размножителе на быстрых

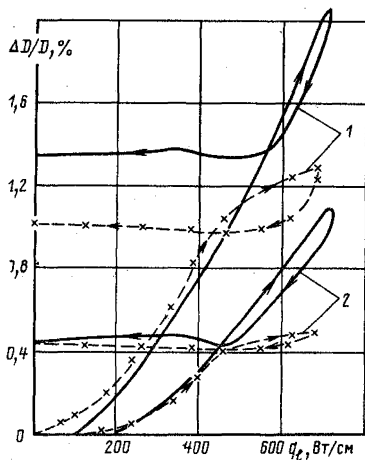
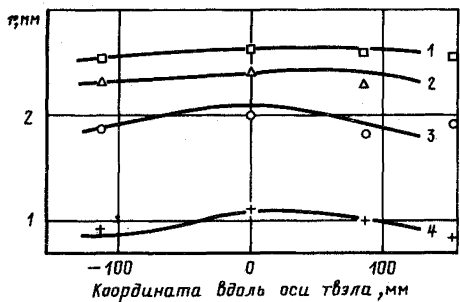


Рис. 4.22. Структурные зоны топлива по радиусу и длине твэла ВМО1:

— — расчет; □, △, ○, + — эксперимент [84]; 1, □ — внешняя граница зоны неперестроенного топлива (наружная поверхность сердечника); 2, △ — внешняя граница зоны выросших равноосных зерен; 3, ○ — внешняя граница зоны столбчатой структуры; 4, + — граница осевой полости

Рис. 4.23. Зависимость локальной деформации оболочки  $\Delta D/D$  в зонах торцев (1) и середины таблетки (2) от тепловой нагрузки  $q_t$ :

— — расчет; — \* — эксперимент (исходный радиальный зазор в холодном состоянии 70 мкм)

нейтронах Rapsodie (Франция) (рис. 4.22). Как и в предыдущем случае, расчетные результаты обнаруживают хорошее согласие с данными послереакторных измерений, которые характеризуются образованием центральной полости, зоны столбчатых зерен высокой плотности, зоны равноосной структуры с относительно низкой плотностью и зоны неперестроенного топлива со стороны внешней поверхности топливного сердечника.

*Механическое взаимодействие топлива с оболочкой.* Изучение механического взаимодействия топливного сердечника и оболочки твэлов имеет принципиальное значение для предсказания работоспособности последней. В то же время, если термомеханические эффекты в твэле при нулевых (или незначительных) выгораниях могут быть описаны удовлетворительно, то по мере увеличения выгорания моделирование взаимодействия топливного сердечника с оболочкой существенно затрудняется вследствие изменения свойств оболочки, жесткости топлива и эволюции контактного давления в процессе облучения.

На рис. 4.23 сопоставлены расчетные результаты локальной деформации оболочки в зоне середины и торцев топливной таблетки (рис. 4.24)

с опытными данными в специальном эксперименте [159]. Этот эксперимент, в котором деформация измерялась в процессе работы реактора, представлятелен для нулевых выгораний, поскольку основные эффекты в топливе состояли в его температурном расширении и пластичности, а свойства оболочки не изменялись при облучении. Из сравнения результатов видно, что концепция так называемых песочных часов для формоизменения таблетки (рис. 4.24) удовлетворительно моделируется программой, о чем свидетельствует аналогичный характер кривых деформации вблизи торца и середины таблетки. Расхождение расчетных и опытных данных при линейной мощности твэла выше 450 Вт/см может быть объяснено поперечным растрескиванием таблетки на несколько (2–3) фрагментов, которое в программе не моделируется.

В силу затруднительности расчетного описания взаимодействия топлива с оболочкой при средних и значительных выгораниях оценки работоспособности оболочек твэлов, облученных до выгораний 1–2%, проводились на основе сравнения рассчитанных величин максимального окружного напряжения в оболочке с предельным его значением, равным 300 МПа. При этом влияние торцев таблеток за счет изменения ее формы (рис. 4.24) на напряжение в оболочке учитывалось дополнительным радиальным расширением топлива, определяемым соотношением

$$\Delta r/R = \alpha(T_{\text{ц}} - T_{\text{пов}}),$$

где  $R$  — радиус таблетки;  $T_{\text{ц}}$  и  $T_{\text{пов}}$  — температуры центра и поверхности топлива соответственно;  $\alpha$  — параметр, характеризующий масштаб эффекта. Типичные значения параметра  $\alpha$ , полученные двумерными расчетами в  $r, z$ -координатах, составляют  $(0,2 \div 1) \cdot 10^{-5} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$  в зависимости от отношения высоты к диаметру таблетки. Результаты сравнительного анализа расчетных и опытных данных показали, что не во всех случаях возможность повреждения оболочек твэлов при таком подходе предсказывалась правильно, хотя в большинстве поврежденных твэлов предсказанное значение максимального напряжения в оболочке превышало предел прочности материала [159].

*Газовыделение из топлива.* Утечка газообразных продуктов деления из топливного сердечника рассматривается по модели эквивалентных сфер с учетом временного захвата диффундирующего газа различными дефектами или внутризеренными пузырями и возможного насыщения этих сточков через коэффициент диффузии, определяемый (4.11). Радиус эквивалентной сферы рассчитывается по текущему значению открытой пористости, изменяющейся при облучении в результате процессов уплотнения и газового распухания топлива. Во внешней относительно холодной зоне топлива радиус эквивалентной сферы определяется по относительной площади поверхности топлива  $S/V$  из выражения  $a^{-1} = S/(3V)$ . В зоне, где газовое распухание становится заметным, во внимание принимаются граничные пузыри с радиусом, большим не-

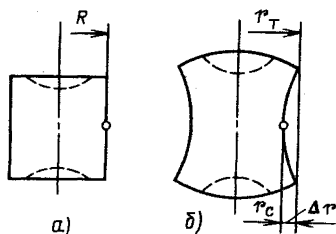


Рис. 4.24. Форма топливной таблетки в исходном состоянии (а) и после разогрева и набухания в процессе эксплуатации твэла (б) :

$R$  – радиус исходной топливной таблетки;  $r_c, r_T$  – радиусы середины и торца таблетки в горячем состоянии

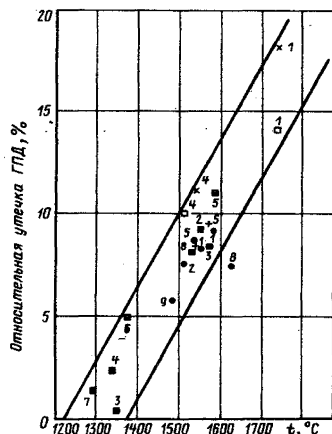


Рис. 4.25. Расчетная (линии) и экспериментальная (символы) зависимости относительной утечки ГПД из сердечников твэлов на основе  $UO_2$  и смешанного топлива (U, Pu) $O_2$  от максимальной температуры их центра:

+ , ■ , ● –  $UO_2$ ; x, □ – (U, Pu) $O_2$ ; 1 – номинальный режим, стандартное топливо; 2 – топливо с преобладающей долей открытой пористости; 3 – топливо с преобладающей долей закрытой пористости; 4 – стабильное топливо; 5 – топливо с большой долей стабильной пористости  $f_1 \epsilon_0$ , способной компенсировать объемные изменения матрицы; 6 – при мощности 95% номинальной; 7 – при мощности 90% номинальной; 8 – при мощности 110% номинальной; 9 – без аккомодации набухания ( $f_1 = 0$ ) [160]

которого критического. Если этот радиус невелик (для  $t \leq 1200$  °C), то считается, что мелкие пузырьки закреплены на границах зерен и радиус сферы рассчитывается, как и прежде. Если радиус пузырьков растет (при  $t \geq 1550$  °C), границы зерна заполняются в результате слияния пузырьков. Под действием внутреннего давления газа пузырьки растут до заполнения открытой пористости, обеспечивая путь для утечки газа через каналы, с момента образования которых вся пористость считается открытой. В этом случае радиусом эквивалентной сферы считают половину размера зерна. Считается, что в зоне столбчатой структуры движущиеся линзообразные поры обеспечивают практически полный сбор и вывод ГПД из матрицы топлива в центральную полость. В квазистатических расчетах обычно принимается, что утечка из столбчатой структуры составляет 100%.

Результаты расчетного описания зависимости утечки ГПД из оксидного топлива с различными характеристиками от температуры в сравнении с опытными данными для твэлов типа В201, облученных в реакторе DODEWAARD до выгорания свыше 2%, показаны на рис. 4.25 [160]. В совокупности с данными рис. 3.12 (см. § 3.2) они характе-

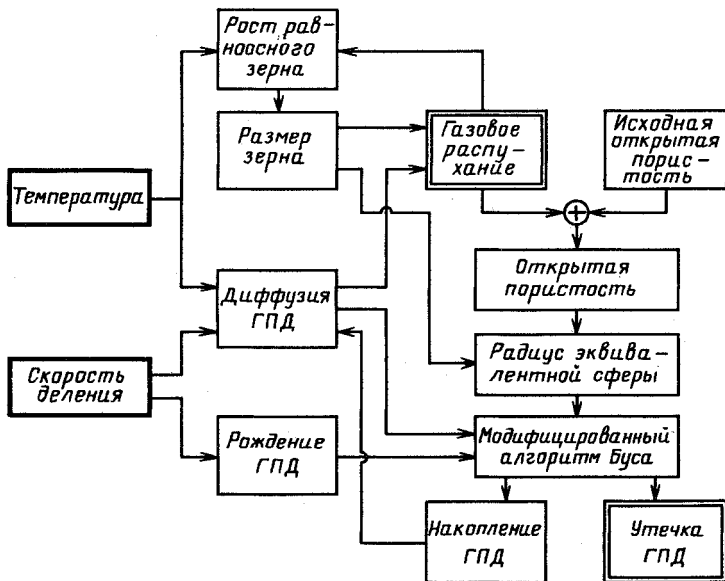


Рис. 4.26. Структура модели поведения оксидного топлива при облучении, реализованной в версии программы COMETHE III-L [82]

ризуют практические возможности используемой модели для оценки газовой выделения из сердечников ТВЭЛОВ.

Связи процессов газовой выделения и распухания с учетом динамики открытой пористости, заложенные в расчетной модели (рис. 4.26 [82]), обеспечивают хорошую чувствительность модели к таким параметрам, как выгорание, время и характеристики изготовления топлива. Это особенно важно для описания утечки ГПД в режимах маневрирования мощности.

В качестве примера описания утечки ГПД из топлива при изменении мощности анализируется ТВЭЛ теплового реактора с водяным охлаждением, облученный при средних выгораниях. Топливные таблетки изготовлены с очень низкой открытой пористостью (0,1%). ТВЭЛ заполнен гелием при давлении 0,1 МПа. На рис. 4.27 [159] показаны результаты расчетного моделирования газовой выделения в зависимости от максимальной линейной мощности в ТВЭле, повышаемой в начале второго цикла облучения после выдержки на постоянной мощности 240 Вт/см в течение 20, 50 и 100 сут соответственно. Первый цикл предварительного облучения составлял 340 сут при постоянной максимальной мощности в ТВЭле 260 Вт/см. Подъем мощности до номинальной в обоих циклах облучения проводился за 24 ч.

Повышение уровня мощности в твэле после длительного периода предварительного облучения вызывает соответствующее увеличение температуры сердечника, которое при достижении некоторого порогового значения приводит к резкому возрастанию утечки ГПД. В результате ухудшения теплопроводности зазора температура топливного сердечника еще более возрастает и тем самым еще больше увеличивает газовыделение под оболочку. В то же время термическое расширение и распухание сердечника постепенно сокращают зазор, в результате чего температура топлива начинает уменьшаться. Новое термическое равновесие достигается обычно, когда зазор закрывается, температура больше не изменяется и утечка стабилизируется (в данном случае на уровне приблизительно 15%). Очевидно, что полнота реализации такой картины зависит от времени. После 20 сут выдержки на постоянной мощности в начале второго цикла равновесие не достигается вообще ни при какой мощности из рассматриваемого диапазона ее значений. После 50 сут оно устанавливается при мощности чуть выше 320 Вт/см, а после 100 сут — приблизительно при 290 Вт/см. Другими словами, чем больше выгорание, тем при меньшей мощности наблюдается резкое возрастание утечки. Для сравнения на рис. 4.27 приведены аналогичные данные для твэла, заподненного гелием при давлении 0,5 МПа, после 100 сут выдержки, на постоянной мощности 240 Вт/см, в начале второго цикла облучения (штриховая линия). Заметим, что у такого твэла не происходит резкого изменения характера утечки при изменении мощности.

Моделирование утечки ГПД из топлива твэлов энергетических реакторов в существенно нестационарных режимах при быстрых изменениях температуры вследствие резких подъемов и сбросов мощности имеет существенные отличия от рассмотренного выше случая. Эти отличия связаны главным образом с необходимостью описания поведения ГПД в условиях растрескивания топлива.

Очевидно, что под действием напряжений, возникающих в топливе при термоциклировании, оно может растрескиваться. При этом наиболее вероятно, что трещины будут проходить по границам зерен, так как из-за меньшей площади контакта, обусловленной наличием газовых пузырей на контактирующих поверхностях, границы зерен являются наиболее слабыми в прочностном отношении местами. В зависимости от конкретных условий, межзеренное растрескивание может приводить к частичному разделению таблетки на фрагменты с увеличением относительной площади поверхности топлива и соответствующим увеличением утечки ГПД. Для описания этого механизма в рассматриваемой модели (рис. 4.26) предусмотрена возможность учета динамики открытой пористости, основанная на следующих представлениях [161].

Вводятся в рассмотрение некоторая температура  $T_r$ , при которой межзеренные газовые пузыри находятся в гидростатическом равновесии, и соотношение для описания ее изменения во времени:

$$dT_r/d\tau = -(1/\theta)(T_r - T),$$

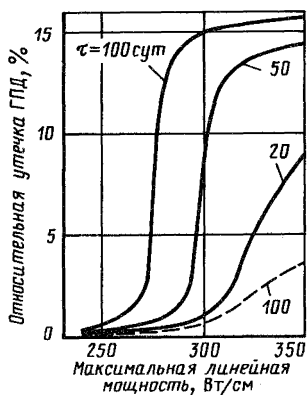


Рис. 4.27. Зависимости относительной утечки ГПД из сердечника от максимальной линейной мощности в твэле при начальном давлении гелия под оболочкой 0,1 МПа (сплошные линии) и 0,5 МПа (штриховая линия) и разном времени предварительной выдержки на постоянной мощности

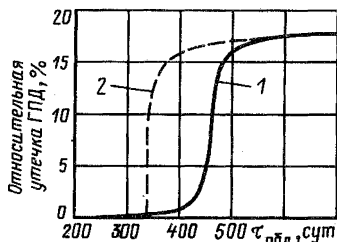


Рис. 4.28. Изменение относительной утечки из топлива в процессе облучения на стационарном режиме (1) и после остановки и резкого подъема мощности до номинальной за 0,01 сут (2)

где  $\theta$  — постоянная времени;  $T$  — реальная температура в данном локальном объеме топлива. Радиус эквивалентной сферы, рассчитываемый в стационарном случае из текущего значения открытой пористости  $\epsilon$ , в период нестационарной работы определяется на основе ее эффективного значения  $\epsilon_3$ , оцениваемого из соотношения

$$\frac{d\epsilon_3}{d\tau} = k(\dot{T})S \frac{\dot{T}}{T_r} - \frac{\epsilon_3 - \epsilon}{\theta},$$

где  $k(\dot{T})$  — коэффициент пропорциональности, зависящий от скорости изменения температуры  $\dot{T}$ ;  $S$  — газовое распухание топлива. Первое слагаемое в правой части этого выражения описывает развитие пористости в результате резкого изменения температуры, а второе характеризует залечивание межзеренных трещин. В результате радиус эквивалентной сферы будет уменьшаться, в чем и заключается эффективный учет фрагментации топлива.

Такой подход применялся к анализу нестационарной утечки при скачкообразном изменении мощности для сердечника твэла водородного реактора из предыдущего примера. Рассматривается твэл, заполненный гелием при давлении 0,1 МПа, с сердечником, изготовленным из топлива с открытой пористостью 0,1%. Проведены два расчета. В первом твэл облучался 700 сут при постоянной максимальной мощности в твэле 260 Вт/см. Во втором рассматривались два цикла облучения по 340 сут каждый при той же мощности, которые были разделены остановкой реактора и затем быстрым подъемом мощности до номинальной. Осуществлялся подъем мощности от 30 до 260 Вт/см за время чуть меньше 15 мин. На рис. 4.28, где приведены результаты расчетов,

видна дополнительная нестационарная утечка ГПД в результате скачка мощности, которая составляет около 8%/сут [161].

Распухание высокотемпературных твэлов. *Математическая модель.* В высокотемпературных оболочечных твэлах (см. § 3.3), где применяется топливо повышенного обогащения делящимся нуклидом, существенную роль играет так называемый эффект "выедания" замедленных нейтронов в направлении к оси твэла, в связи с чем наблюдается заметный спад распределения интеграла делений от периферии топливного блока к его центру. Это обусловлено тем, что с увеличением обогащения топлива деления происходят в основном в поверхностном слое тепловыделяющего сердечника, при этом внутренние слои топлива блокируются [162]. Указанный эффект в сильнообогащенном топливе настолько значителен, что пренебрежение им, как это часто принято для твэлов энергетических реакторов, когда депрессия интеграла делений по радиусу сердечника не учитывается в силу ее малости, в практике расчетного моделирования может приводить к существенным искажениям реальной картины объемных изменений сердечника и твэла в целом. Поэтому при моделировании газового распухания высокотемпературных оболочечных твэлов необходимым условием является корректный учет пространственного распределения источников осколков делений (рождения газообразных продуктов), которое совпадает с распределением плотности делений и определяется пространственно-энергетическим распределением нейтронов и пространственным распределением делящегося вещества.

Распределение энерговыделения от осколков деления  $q_V(\mathbf{r})$  в твэле гетерогенного реактора имеет радиальную и угловую зависимости, определяемые распределением интеграла делений  $I(\mathbf{r})$ :

$$I(\mathbf{r}) = \int_0^{\infty} \Sigma_f(\mathbf{r}, E) \Phi(\mathbf{r}, E) dE, \quad (4.12)$$

где  $\mathbf{r} = \{ \rho, \varphi \}$ ;  $\rho$  — радиус,  $\varphi$  — азимутальный угол, образующие систему координат, связанную с центром твэла;  $\Sigma_f(\mathbf{r}, E)$  — макроскопическое сечение деления;  $\Phi(\mathbf{r}, E)$  — плотность скалярного потока нейтронов.

В условиях реактора с сильной гетерогенностью расчет энергораспределения в топливном блоке имеет некоторые специфические особенности и требует применения эффективных алгоритмов. В [163, 164] рассмотрена методика определения пространственного распределения энерговыделения в сильно поглощающем блоке гетерогенного реактора. В общем случае распределение скалярного потока нейтронов  $\Phi(\mathbf{r}, E)$  в сердечнике, необходимое для отыскания интеграла делений, вычисляется на основании расчетов гетерогенного реактора с высокой степенью приближения кинетического уравнения. Однако в практике инженерного моделирования распухания твэлов такие вычисления слишком трудоемки, поэтому задачу упрощают. При этом



в области замедлителя для определения скалярного потока нейтронов используются "гетерогенные методы", в которых применяется диффузионное приближение с эффективными граничными условиями на поверхности блоков [165]. Распределение нейтронов в областях, занятых блоками, определяется из решения уравнения переноса нейтронов в интегральной форме. Вне области замедлителя пренебрегается рассеянием и замедлением нейтронов по сравнению с поглощением, а для углового распределения нейтронов, выходящих из замедлителя, используется  $P_1$ -приближение:

$$\varphi(r_s, \Omega) = \frac{1}{4\pi} \left\{ \Phi(r_s) - 3D\epsilon[\Omega, \nabla \Phi(r_s)] \right\} \text{ при } (\Omega, \mathbf{n}) < 0.$$

Здесь  $D$  – коэффициент диффузии в замедлителе;  $\Omega$  – вектор направления движения нейтронов;  $\mathbf{n}$  – внешняя нормаль к поверхности блока в точке  $r_s$ ;  $\epsilon$  – поправка к  $P_1$ -приближению, учитывающая кривизну блока. Градиент скалярного потока выражается с помощью так называемого эффективного граничного условия

$$\Gamma = (1/\Phi) (\mathbf{n}, \nabla \Phi), \quad (\mathbf{n}, \nabla \Phi) = \Gamma \Phi.$$

Значения скалярного потока  $\Phi(r_s)$  на границе берутся из гетерогенного расчета или из эксперимента, как в [163]. При таких предположениях решаются односкоростные задачи о распределении нейтронов в многозонном поглощающем блоке без источников, с заданным угловым распределением нейтронов на границе. Энергораспределение за счет делений в сердечнике гетерогенного реактора рассчитывается в малогрупповом представлении по энергии в соответствии с (4.12):

$$q_\nu(\rho, \varphi) \approx c \sum_{k=1}^m \Sigma_{f_k}(\rho) \Phi_k(\rho, \varphi), \quad m \leq 4.$$

На рис. 4.29 в качестве примера приведено относительное распределение энерговыделения по азимутальному углу на разных расстояниях от центра твэла [163], радиальная зависимость энерговыделения дана на рис. 4.33.

Расчет поля температур в сердечнике и оболочке круглого стержневого твэла при неравномерном энерговыделении и нелинейных граничных условиях рассмотрен в [166]. Разработанный метод решения двумерной задачи в  $\rho, \varphi$ -координатах с внешней нелинейностью базируется на свойстве независимости функции влияния (функции Грина) от граничных условий. Суть его состоит в сведении краевых задач для дифференциальных уравнений со сложными условиями на границах к некоторым интегральным уравнениям относительно неизвестных граничных температур, после определения которых задача о температурных полях внутри топливного блока и оболочки решается по любой стандартной методике.

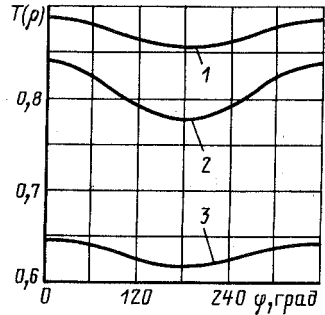
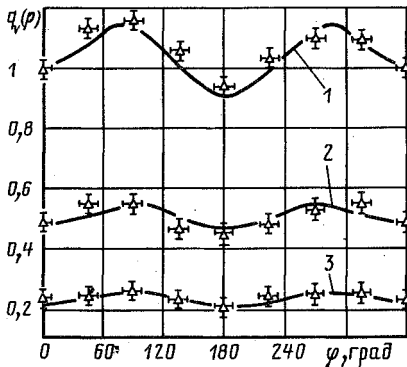


Рис. 4.29. Относительное распределение энерговыделения  $q_v(\rho, \varphi)$  в сердечнике твэла в зависимости от азимутального угла  $\varphi$  и расстояния от его центра ( $R = 0,838R_{a,з}$ , где  $R_{a,з}$  – радиус активной зоны реактора):

— расчет;  $\Delta$  – лавсановая шенка; 1 –  $\rho = R_{\delta}$ ; 2 –  $\rho = 0,945R_{\delta}$ ; 3 –  $\rho = 0,822R_{\delta}$  ( $R_{\delta}$  – радиус топливного блока)

Рис. 4.30. Зависимость относительного распределения температуры  $T(\rho, \varphi)$  в твэле от азимутального угла  $\varphi$  и расстояния от его центра:

1 –  $\rho = 0,2R_{\delta}$ ; 2 –  $\rho = R_{\delta}$ ; 3 –  $\rho = R_{\text{ТВЭЛ}}$  ( $R_{\text{ТВЭЛ}}$  – внешний радиус оболочки)

Граничные распределения температур находятся из решения системы нелинейных интегральных (в дискретном случае из решения векторно-матричных) уравнений вида

$$-\oint_S \lambda(\mathbf{r}'_s) \frac{\partial G(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}'_s)}{\partial n_s} T(\mathbf{r}'_s) d\mathbf{r}'_s =$$

$$= F \left[ T(\mathbf{r}_s), \frac{\partial T^*(\mathbf{r}_s)}{\partial n_s} \right], \quad \mathbf{r}_s, \mathbf{r}'_s \in S$$

методом последовательных приближений; внутри системы каждое уравнение решается методом Ньютона. В представленном уравнении  $F[...]$  – нелинейная функция искомой температуры поверхности  $T(\mathbf{r}_s)$  (граничные условия задачи) и температурного градиента  $\partial T^*(\mathbf{r}_s)/\partial n_s$  на границе рассматриваемой области, определяемого при нулевой ее температуре.

Ядра интегральных уравнений определяются из численного решения вспомогательных задач для функции влияния  $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}_s)$  единичного источника, помещенного на границу, на основании соотношения

$$\lambda(\mathbf{r}_s) \frac{\partial G(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}'_s)}{\partial n_s} \approx \frac{\lambda(\mathbf{r}_s)}{\Delta n} \left[ G(\mathbf{r}_s - \Delta n, \mathbf{r}_s) - \delta(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}'_s) \right]. \quad (4.13)$$

Причем для вычисления полного ядра достаточно расчета  $G(r_s - \Delta n, r_s)$  лишь при одном фиксированном значении азимутального угла, поскольку рассматриваемая задача обладает вращательной симметрией. При этом отпадает необходимость в перевычислении в каждой итерации ядра (4.13), поскольку образующая его функция Грина  $\partial G(r_s, r'_s)/\partial n_s$  не зависит от формы граничного распределения температуры.

На рис. 4.30 приведены результаты [166], иллюстрирующие неравномерность распределения температуры по сечению твэла гетерогенного реактора. Из приведенных результатов видно, что для твэлов этого типа характерны значительные неравномерности распределений энерговыделения и температуры по сечению твэла. Это обстоятельство следует иметь в виду при построении модели набухания твэла, поскольку сильная неравномерность энергораспределения и выгорания, которым обусловлено рождение ГПД, приводит к сложному взаимодействию локальных объемов топлива, набухающих с существенно различными скоростями.

Принятый в данном случае механизм газового набухания топлива, связанный с образованием и развитием межзеренной пористости, рассматривается в соответствии с моделью [110] (см. § 4.2). Поведение ГПД в структуре облученного топлива характеризуется схемой, изображенной на рис. 4.17, а относительная доля газа в МЗП  $\varphi(\tau)$ , обуславливающая набухание топлива — соотношением (4.7). При этом выход газа из зерна на его границы  $\psi_3(\tau)$  вычисляется, согласно (2.11), с учетом температурной зависимости коэффициента диффузии Хе и Кт в зерне  $UO_2$ , определяемой (2.10), а относительная утечка ГПД из топлива  $\psi_T(\tau)$ , также зависящая от температуры — на основе активационной модели [59]

$$\psi_T(\tau) = 1 - \frac{1 - m}{a\tau} [1 - \exp(-a\tau)], \quad (4.14)$$

где функции локальной утечки  $m$  и  $a$  (см. с. 87) имеют вид:

$$m = C_m \exp(-Q_m/RT), \quad a = C_a \exp(-Q_a/RT). \quad (4.15)$$

Здесь  $C_m$ ,  $Q_m$ ,  $C_a$ ,  $Q_a$  — коэффициенты, определяемые экспериментально. Учет газового набухания в деформационном поведении твэла осуществляется выражением (4.8).

Математическое описание напряженно-деформированного состояния твэла основано на подходе, разработанном в [157] и связанном с учетом конкретных особенностей конструкции и режимов работы твэла для построения приближенных моделей. Принятая модель схематично показана на рис. 4.31, а.

Твэл рассматривается как цилиндр, составленный из слоев, имеющих различные (но постоянные в пределах слоя) свойства и жестко скрепленных между собой как в осевом, так и в радиальном направле-



Результаты вне реакторных исследований ползучести керамических материалов ( $UO_2$ ) при высоких температурах и умеренных напряжениях [22] показывают, что связь скорости деформации ползучести с напряжением на установившейся стадии имеет линейный характер; так, при одноосном растяжении

$$\dot{\epsilon}_I^T = K^T \sigma_I, \quad (4.16)$$

где коэффициент пропорциональности  $K^T$ , согласно [167], можно представить в виде

$$\left. \begin{aligned} K^T(\tau) &= K_0 L^{-2} \exp[-Q_T/(RT)] \left\{ 1 + K_1 [K_2 + S^T(\tau) + \epsilon_0] \right\}, \\ S^T(\tau) &= S(\tau) - S^T(\tau); \quad S^T(\tau) = l\beta_G(\tau)\tau. \end{aligned} \right\} \quad (4.17)$$

Здесь  $Q_T$  — энергия активации процесса ползучести  $UO_2$ , Дж/моль;  $S(\tau) = \Delta V/V$  — общее распухание топлива;  $S^T(\tau)$  — твердое распухание топлива;  $l\beta_G(\tau)$  — скорость твердого распухания,  $\text{ч}^{-1}$ .

Радиационная составляющая ползучести топлива, как показано в [168], существенна лишь при температурах менее  $1000^\circ\text{C}$ .

Ползучесть материала оболочки описывается степенной зависимостью

$$\dot{\epsilon}_I^{\text{об}} = B_I^T \sigma_I^{m_T} + B_I^R \sigma_I^{m_R}, \quad (4.18)$$

где первое слагаемое выражает температурную, а второе — радиационную составляющие ползучести. Соответствующие выражения для коэффициентов ползучести приняты в форме

$$\left. \begin{aligned} B_I^T(\tau) &= B_0^T \exp[-Q_{\text{об}}/(RT)] [1 + \lambda_1^T \exp(-\lambda_2^T \tau)]; \\ B_I^R &= B_0^R \bar{E} \phi, \end{aligned} \right\} \quad (4.19)$$

причем на установившейся стадии ползучести  $\lambda_1^T = 0$ .

В (4.17) — (4.19)  $K_i$  ( $i = 0, 1, 2$ ),  $B_0^T$ ,  $B_0^R$ ,  $\lambda_i^T$  ( $i = 1, 2$ ) — коэффициенты;  $m_T$  и  $m_R$  — показатели степени у напряжений в температурной и радиационной составляющих ползучести соответственно;  $\bar{E}$  — средняя энергия нейтронов, МэВ;  $\phi$  — плотность потока нейтронов, нейтр/( $\text{см}^2 \cdot \text{с}$ ).

В итоге система уравнений для математического описания процессов, протекающих в твэле, имеет вид

$$\left. \begin{aligned} \frac{d\epsilon_\theta}{d\tau} &= \frac{Q_1(\tau) [q_1(\tau) + q_2(\tau)] - Q_2(\tau) q_1(\tau)}{2q_1(\tau) q_2(\tau)}; \\ \frac{d\epsilon_z}{d\tau} &= \frac{Q_2(\tau) - Q_1(\tau)}{q_2(\tau)}; \end{aligned} \right\}$$

$$\begin{aligned}
 \frac{d\sigma_{\theta}}{d\tau} &= \frac{a_3(\tau)b_2(\tau) - a_2(\tau)b_3(\tau)}{a_1(\tau)b_2(\tau) - a_2(\tau)b_1(\tau)}; \\
 \frac{d\sigma_z}{d\tau} &= \frac{a_1(\tau)b_3(\tau) - a_3(\tau)b_1(\tau)}{a_1(\tau)b_2(\tau) - a_2(\tau)b_1(\tau)}; \\
 \frac{dS_i}{d\tau} &= \frac{K_i^T(\tau)}{\frac{r_i(\tau)^2}{r_{i-1}(\tau)^2} + \frac{1}{3}} \left\{ \frac{3W_i(\tau)}{S_i(\tau) - S_i^T(\tau) + \epsilon_0(1 - \lambda_{\epsilon})} + \right. \\
 &+ 3A_i(\tau) + \left. \frac{1}{K_i^T(\tau)} \frac{d\epsilon_z}{d\tau} \right\} + \\
 &+ \frac{\frac{dS_{i+1}}{d\tau} + \frac{1}{r_i(\tau)^2} \sum_{k=i+1}^{n_s} r_k(\tau)^2 \left[ \frac{dS_{k+1}}{d\tau} - \frac{dS_k}{d\tau} \right]}{1 + \frac{1}{3} \frac{r_{i-1}(\tau)^2}{r_i(\tau)^2}},
 \end{aligned} \tag{4.20}$$

где  $i = n_s, n_s - 1, n_s - 2, \dots, 1$ ;  $dS_{n_s+1}/d\tau = 2d\epsilon_{\theta}/d\tau + d\epsilon_z/d\tau$ .  
Здесь

$$\begin{aligned}
 Q_1(\tau) &= G(\tau) + \frac{1}{2} \left[ \frac{p_{r.o}(\tau)}{100} - \frac{p_{тн} r_{n_s}(\tau) + \delta}{100 r_{n_s}(\tau)} - \right. \\
 &- \left. \sigma_{\theta}(\tau) \frac{\delta}{r_{n_s}(\tau)} \right]; \\
 Q_2(\tau) &= G(\tau) + \frac{1}{3r_{n_s}(\tau)^2} \sum_{k=1}^{n_s} \frac{dS_k}{d\tau} I_k(\tau) r_k(\tau)^2 r_{k-1}(\tau)^2 + \\
 &+ \frac{1}{2} \left\{ \frac{p_{r.o}(\tau)}{100} - \frac{p_{тн} [r_{n_s}(\tau) + \delta]^2}{100 r_{n_s}(\tau)^2} \right\} - \\
 &- \sigma_z(\tau) \frac{\delta [r_{n_s}(\tau) + \delta/2]}{r_{n_s}(\tau)^2}; \\
 q_1(\tau) &= \frac{1}{3} r_{n_s}(\tau)^2 \sum_{k=1}^{n_s} I_k(\tau);
 \end{aligned}$$

$$q_2(\tau) = \frac{1}{3r_{n_s}(\tau)^2} \sum_{k=1}^{n_s} I_k(\tau) r_k(\tau)^2 r_{k-1}(\tau)^2;$$

$$a_1(\tau) = A_\theta(\tau) + 1/E; \quad b_2(\tau) = B_z(\tau) + 1/E;$$

$$a_2(\tau) = b_1(\tau) = A_z(\tau) - \nu/E;$$

$$a_3(\tau) = -M(\tau) [\sigma_\theta(\tau) - \frac{1}{2} \sigma_z(\tau)] + \frac{d\epsilon_\theta}{d\tau};$$

$$b_3(\tau) = -M(\tau) [\sigma_z(\tau) - \frac{1}{2} \sigma_\theta(\tau)] + \frac{d\epsilon_z}{d\tau};$$

$$M(\tau) = B_I^T |\sigma_u(\tau)|^{mT-1} + B_I^R |\sigma_u(\tau)|^{mR-1};$$

$$W_i(\tau) = \frac{T_i}{273} \left\{ 24,7 \int_0^\tau \beta_G(\tau') d\tau' \varphi(\tau) + (1 - \lambda_\epsilon) \epsilon_0 \right\};$$

$$A_i(\tau) = -P_{r.o}(\tau) + \frac{2}{3} \sum_{k=1}^{i-1} I_k(\tau) \left[ \sum_{j=k}^{n_s} \left( \frac{dS_{j+1}}{d\tau} - \frac{dS_j}{d\tau} \right) \right];$$

где

$$G(\tau) = \frac{1}{3} \sum_{k=1}^{n_s} \left\{ [r_k(\tau)^2 - r_{k-1}(\tau)^2] \sum_{j=1}^{k-1} I_j(\tau) + I_k(\tau) r_k(\tau)^2 \right\} \frac{dS_k}{d\tau};$$

$$I_i(\tau) = \frac{1}{2K_i^T(\tau)} [r_{i-1}(\tau)^{-2} - r_i(\tau)^{-2}], \quad i = 1(1)n_s;$$

текущие значения радиусов слоев вычисляются по формулам:

$$r_i(\tau) = \left\{ r_{n_s}(\tau)^2 - \frac{1}{1 + \epsilon_z(\tau)} \sum_{k=i+1}^{n_s} \times \right. \\ \left. \times [r_k(\tau_0)^2 - r_{k-1}(\tau_0)^2] (S_k(\tau) + 1) \right\}^{1/2}; \\ r_{n_s}(\tau) = r_{n_s}(\tau_0) [1 + \epsilon_\theta(\tau)];$$

давление газа в осевой полости определяется (для замкнутой полости) из выражения

$$P_{r.o}(\tau) = \frac{24,7 \bar{T}_r \psi_a}{273 [a_{к.о} + r_0(\tau)^2 / r_{n_s}(\tau)^2]} + P_{o.п.}$$

где  $\bar{T}_r$  — средняя температура газа в осевой полости, К;  $a_{к.о}$  — компенсационный объем осевой полости, отнесенный к объему под оболочкой;  $\psi_a$  — доля газа, вышедшего в осевую полость из топлива, определяемая из соотношения

$$\psi_a = \sum_{i=1}^{n_s} [1 - \varphi_{r_i}(\tau)] \beta_{G_i} \tau \left[ \frac{r_i(\tau)^2}{r_{n_s}(\tau)^2} - \frac{r_{i-1}(\tau)^2}{r_{n_s}(\tau)^2} \right].$$

При

$$\sigma_u(\tau) = \left\{ \sigma_\theta(\tau)^2 + \sigma_z(\tau)^2 - \sigma_\theta(\tau) \sigma_z(\tau) \right\}^{1/2} < \sigma_\tau$$

$$A_\theta(\tau) = A_z(\tau) = B_z(\tau) = 0;$$

при

$$\sigma_u(\tau) \geq \sigma_\tau$$

$$A_\theta(\tau) = \frac{G_p}{\sigma_u(\tau)^2} \left[ \sigma_\theta(\tau) - \frac{1}{2} \sigma_z(\tau) \right]^2;$$

$$A_z(\tau) = \frac{G_p}{\sigma_u(\tau)^2} \left[ \sigma_\theta(\tau) - \frac{1}{2} \sigma_z(\tau) \right] \left[ \sigma_z(\tau) - \frac{1}{2} \sigma_\theta(\tau) \right];$$

$$B_z(\tau) = \frac{G_p}{\sigma_u(\tau)^2} \left[ \sigma_z(\tau) - \frac{1}{2} \sigma_\theta(\tau) \right]^2,$$

где

$$G_p = \frac{2(1 - \nu)}{3E} \frac{1 - E_p/E}{E_p/E},$$

здесь  $\nu$  — коэффициент Пуассона;  $E$  и  $E_p$  — модуль упругости и пластичности оболочки соответственно, МН/м<sup>2</sup>.

В приведенных формулах  $p_{тн}$  — давление теплоносителя, МПа;  $\lambda_\epsilon$  — доля внутризеренной пористости в общей пористости исходной структуры.

Система  $n_s + 4$  уравнений (4.20) с учетом (4.7), (4.14) — (4.19) дает математическое описание распухания твэла с керамическим топливом в рамках сформулированных выше модельных представлений о поведении ГПД при заданных неоднородных пространственных распределениях энерговыделения и температуры при стационарном режиме работы реактора (рис. 4.31).

В качестве начальных условий для системы нелинейных дифференциальных уравнений (4.20) задаются значения  $\epsilon_\theta(\tau_0)$ ,  $\epsilon_z(\tau_0)$ ,  $\sigma_\theta(\tau_0)$ ,  $\sigma_z(\tau_0)$  и  $S_i(\tau_0)$ ,  $i = 1(1)n_s$ .



Система уравнений (4.20), приведенная к нормальному виду,

$$\left. \begin{aligned} y_i(\tau_0) &= z_{0i}; \\ y_i' &= f_i(\tau, y_1, \dots, y_s), \quad \tau \in [\tau_0, \tau_0 + T], \quad i = \overline{1, s} \end{aligned} \right\} \quad (4.21)$$

относится к так называемым жестким системам обыкновенных дифференциальных уравнений, у которых собственные значения  $\lambda_j$  матрицы  $\partial f / \partial y = \{ \partial f_i / \partial y_j \}_{i,j = \overline{1, s}}$  сильно отличаются одно от другого:

$$|\lambda_1| \gg |\lambda_2| \gg \dots \gg |\lambda_s|, \quad |\lambda_1| \gg |\lambda_s|.$$

Физически это означает, что жесткие дифференциальные системы описывают процессы с существенно различными временными константами.

Применение в этих условиях общепринятых методов типа Рунге—Кутта или Адамса приводит к большим затратам машинного времени из-за ограничения на шаг интегрирования:

$$h \leq C / |\lambda_1|,$$

где  $\lambda_1$  — наибольшее по модулю собственное значение мгновенного якобиана системы;  $C$  — постоянная, зависящая от метода (обычно она не превышает нескольких единиц). Поэтому для эффективного численного решения жестких систем, подобных (4.21), требуются специальные методы, алгоритм которых автоматически перестраивался бы в соответствии с локальными требованиями.

При численной реализации сформулированной модели использован метод Гира [169], который позволяет существенно сократить время численного счета, проводя интегрирование с большим шагом. При этом в отличие от общепринятых методов быстро затухающие компоненты решения, обусловленные малыми временными параметрами, не вызывают неустойчивости. Ниже приводятся результаты расчетных исследований набухания высокотемпературного топлива в оболочке, выполненных с использованием разработанной в [140] программы OVERAT.

*Результаты расчетного моделирования.* Работоспособность развитой модели проверялась на основе сравнения расчетных результатов с данными экспериментов. Экспериментальные исследования проводились с плотными (плотность более 95% теоретической) находящимися в оболочке таблетками мелкозернистого диоксида урана на универсальной петлевой установке водо-водяного реактора при условиях облучения:  $t = 1750^\circ\text{C}$ ,  $B \leq 10^{20}$  дел/см<sup>3</sup>, радиальный градиент температуры около  $200^\circ\text{C} \cdot \text{см}^{-1}$  [110]. Среднее объемное набухание определялось методом гидростатического взвешивания с погрешностью не более 10%. Пространственное распределение локального газового набухания по объему таблетки  $\text{UO}_2$  изучалось методом металлографии и с обработкой результатов на установке "Квантимер-720". Сравнение расчетных и опытных данных по набуханию  $\text{UO}_2$  в оболочке показало, что пред-

ложенная модель дает их удовлетворительное совпадение в пределах погрешности измерений, что приемлемо для практических целей. Не менее важным при этом представляется изучение чувствительности модели к возмущениям входных параметров, что связано с необходимостью анализа системы исходных данных с целью выявления наиболее существенных параметров, в основном влияющих на результат, и оценкой масштаба этого влияния.

Типичная расчетная схема одного из сечений твэла показана на рис. 4.31. Разбиение сечения на слои и выбор их числа производится так, чтобы наиболее полно отражалось изменение параметров в радиальном направлении. Для удобства описания различного характера изменения отдельных свойств и параметров топлива по радиусу твэла (например, температуры и размера зерна) предусмотрена возможность объединения нескольких слоев в физические зоны, что дает экономии объема хранимой информации. Принцип такого объединения показан на рис. 4.31.

При формулировке задачи для механического описания поведения топлива в оболочке принимались обычные для расчетов твэлов энергетических реакторов допущения, наиболее важными из которых являются условия о линейном законе ползучести материала сердечника (4.16) и малом вкладе участка неустановившейся ползучести оболочки в деформацию. Необходимые для расчетных исследований длительности поведения оболочек твэлов данные о ползучести тугоплавких материалов (сплавов Mo и W), аппроксимированные в виде (4.18), при проведении конкретных расчетов брались из [170]. Числовые значения констант в линейной зависимости скорости температурной ползучести диоксида урана от напряжения (4.16), учитывающей влияние размера зерна, стехиометрии и плотности топлива, выбраны следующие:  $K_0 = 3 \cdot 10^8$ ;  $K_1 = 211$ ;  $K_2 = 0,03$ ;  $l = 0,132 \text{ см}^3/\text{г } ^{235}\text{U}$ ;  $Q_T = 387 \text{ кДж/моль}$ . При этих значениях констант зависимость (4.16) справедлива при пористости не менее 3%, напряжениях не более 30–40  $\text{MN/m}^2$  в диапазоне температур 500–2000 °C и при размере зерна 4–35 мкм.

Расчетная модель содержит ряд исходных параметров, определяемых в результате прямых измерений. К таким параметрам относятся исходные геометрические размеры, плотность и размер зерна. Такие параметры, как размер зерна  $\text{UO}_2$  и ширина периферийной зоны столбчатой структуры (короны), образующейся в процессе массопереноса топлива на оболочку, могут быть получены по аналитическим зависимостям типа (1.2) на основании исходных значений. При проверке расчетной модели они задавались по результатам прямых послереакторных измерений.

Правомерность такого задания показана при анализе чувствительности модели к вариациям исходных данных. Важную группу исходных данных образуют параметры механизма газового распухания. Посколь-

ку принятая модель основывается на описании газового распухания за счет накопления газообразных продуктов деления в закрытых межзеренных порах, то количество этого газа является наиболее важным параметром. В связи с этим для расчета необходимы данные о первоначальном состоянии пористости топлива, а также сведения о количестве и распределении неосколочных (технологических) газов в закрытых порах. Однако этими данными в полном объеме, как правило, не располагают, что заставляет вводить при расчете известные допущения.

В модели предусмотрена возможность варьирования первоначального состояния пористости топлива, а также количества и распределения технологических газов в закрытых порах и их поведения в процессе облучения. Для этого в формулу для гидростатического давления в матрице топлива (4.8) введена соответствующая поправка, т. е. вместо (4.8) используется соотношение

$$\sigma_r(\tau) = \frac{T}{273[S^r(\tau) + (1 - \lambda_\epsilon)\epsilon_0]} \times \\ \times \left\{ 24,7 \int_0^\tau \beta_G(\tau') d\tau' \varphi(\tau) + (1 - \lambda_\epsilon)\epsilon_0 \frac{273}{T_c} \exp(-b\tau) \right\}, \quad (4.22)$$

где  $\lambda_\epsilon$  — доля пористости в исходной структуре, расположенной внутри зерен;  $T_c$  — некоторая условная температура спекания топлива, служащая для управления начальным давлением неосколочного газа, К;  $b$  — константа, характеризующая поведение технологического газа по времени. Так, если весь технологический газ находится только в межзеренных порах, а количество его постоянно по времени и соответствует давлению 0,1 МПа при нормальной температуре, то в (4.22) задаются:  $b = 0$ ,  $T_c = 273$  К и  $\lambda_\epsilon = 0$ . Другие представления о поведении неосколочного газа могут быть легко реализованы при помощи соответствующего набора числовых значений этих констант.

Важнейшим параметром, определяющим выход газа на границы зерен, является коэффициент объемной диффузии газа в кристаллической решетке  $UO_2$ . При расчетах использована следующая температурная зависимость коэффициента диффузии:

$$D^* = \begin{cases} 548 \exp\left(-\frac{140\,000}{2T}\right), \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}, & 1773 \leq T \leq 2073 \text{ К}, \\ 1,26 \cdot 10^{-6} \exp\left(-\frac{70\,000}{2T}\right), \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}, & 1623 \leq T < 1773 \text{ К}. \end{cases}$$

Функция  $\psi_r(\tau)$ , необходимая для вычисления доли газа на границах зерен для рассматриваемых условий облучения, определяется следующими значениями коэффициентов (4.15) в (4.14):

$$m = 260 \exp(-43\,300/(2T)), \quad a = 11,2 \exp\left(-\frac{40\,300}{2T}\right).$$

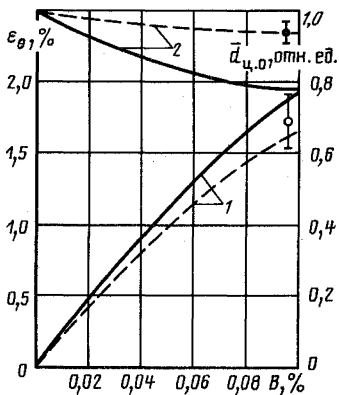


Рис. 4.32. Зависимость относительной деформации оболочки  $\epsilon_{\theta}$  (1) и диаметра центрального отверстия таблетки  $\bar{d}_{ц.о.}$  (2) от выгорания:

— — без учета изменения диаметра центральной полости вследствие испарения топлива с ее поверхности; - - - с учетом массопереноса  $UO_2$ ; ○ — эксперимент по  $\epsilon_{\theta}$ ; ● — эксперимент по  $\bar{d}_{ц.о.}$

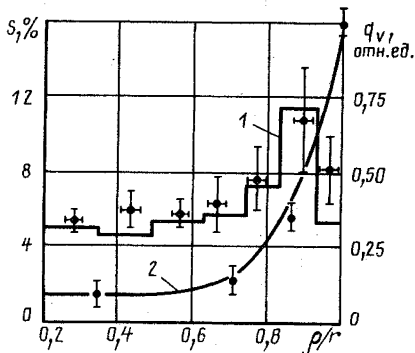


Рис. 4.33. Распределение локального газового распухания  $S$  (1) и относительного энерговыделения  $q_v$  (2) по радиусу цилиндрического образца из  $UO_2$ :

— — расчет; ● — эксперимент ( $r$  — радиус образца) [110]

На рис. 4.32 показаны расчетные зависимости относительной деформации молибденовой оболочки капсулы  $\epsilon_{\theta} = \Delta D/D$ , в которой облучались цилиндрические образцы из спеченного  $UO_2$ , и центрального отверстия таблетки  $\bar{d}_{ц.о.}$  от выгорания в сравнении с экспериментальными результатами. Экспериментальное и расчетное радиальные распределения газового распухания топлива по сечению цилиндрического образца, облученного до  $B = 3 \cdot 10^{19}$  дел/см<sup>3</sup>, показаны на рис. 4.33, здесь же показано относительное распределение энерговыделения.

Как следует из приведенного сопоставления, при соответствующем выборе системы входных параметров достигается согласие пространственно-временного распределения газового распухания диоксида урана при облучении и деформации оболочки, полученных расчетным путем, с результатами измерений.

В то же время ряд входных параметров, таких, например, как размер зерна, ширина короны, температура и других, имеют ограниченную точность измерений или небольшое число замеров. Для выявления параметров, в основном влияющих на результат, и оценки масштаба этого влияния анализируется чувствительность модели к вариациям входных параметров. В качестве примера такого изучения в таблице приведены результаты параметрических исследований чувствительности модели к возмущениям исходных данных.

Таблица. Основные параметры модели и влияние отклонений их значений от номинальных на деформацию оболочки и распухание топлива

Параметр модели	Значение параметра		Отклик модели	
	Исходное	Возмущенное	$\frac{\Delta \epsilon_{\theta}}{\epsilon_{\theta}}$ 100%	$\frac{\Delta \bar{S}}{S}$ 100%
Средний по объему диаметр равноосного зерна, мкм	15	20	-4	-10
		10	6	19
Размер зерна в короне, мкм	30	40	-16	-17
		20	23	12
Ширина короны, отн. ед.	$0,1R_{\delta}$	$0,05R_{\delta}$	17	12
Выгорание, %	0,1	0,125	7	15
		0,075	-7	-15
Максимальная температура топлива, С	1750	1800	20	18
		1700	-30	-30
Давление технологического газа в исходной структуре топлива при нормальной температуре, МПа	0,1	0,015	-75	-60
Среднее по температуре значение коэффициента диффузии ГПД в зерне $UO_2$ , $cm^2 \cdot c^{-1}$	$10^{-14}$	$10^{-13}$	80	55
		$10^{-15}$	-65	-50
Относительный диаметр центрального отверстия $d_{ц.о}/D$ , отн. ед.	0,18	0,24	-7,5	2,5
		0,12	6	-2

Гидростатическое давление в матрице топлива (4.22), вызванное накоплением газа в межзеренных пузырьках, представляет собой сумму давлений осколочного  $p_{оск}$  и технологического  $p_{техн}$  газов, т. е.

$$p_r(\tau) = p_{оск}(\tau) + p_{техн}(\tau),$$

где

$$p_{оск}(\tau) = \frac{T \cdot 24,7 \int_0^{\tau} \beta_G(\tau') d\tau' \varphi(\tau)}{273[S^{\Gamma}(\tau) + (1 - \lambda_{\epsilon})\epsilon_0]} ;$$

$$p_{техн}(\tau) = \frac{T(1 - \lambda_{\epsilon})\epsilon_0 \exp(-b\tau)}{T_c[S^{\Gamma}(\tau) + (1 - \lambda_{\epsilon})\epsilon_0]}.$$

На рис. 4.34 показано изменение гидростатического давления  $p_r$  и его составляющих  $p_{оск}$  и  $p_{техн}$  в зависимости от выгорания для двух рассмотренных в таблице начальных давлений технологического газа в исходной структуре топлива.

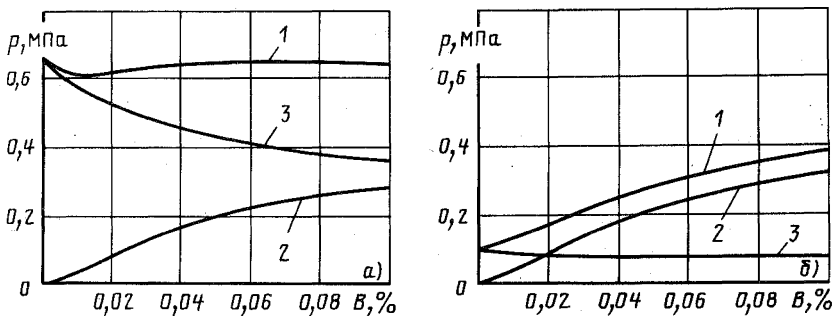


Рис. 4.34. Зависимость изменения давления газа в закрытой межзеренной пористости от выгорания для исходных давлений технологического газа при нормальной температуре 0,1 МПа (а) и 0,015 МПа (б):

1 —  $P_T$ ; 2 —  $P_{ок}$ ; 3 —  $P_{тех}$

При известных параметрах среды (составе, температуре и давлении), в которой осуществляется спекание конкретного топлива, количество неосколочного газа можно оценить с учетом возможного доспекания пористости после ее закрытия из следующих соображений. Известно, что спекание таблеток из диоксида урана, как правило, происходит в атмосфере инертного газа ( $Ar$ ) при нормальном давлении (0,1 МПа) и высокой температуре (1800 °С). И если переход открытой пористости в закрытую происходит при плотности, например около 0,93 теоретической, а доспекание продолжается до плотности 0,97 теоретической, то давление технологического газа при нормальных условиях в замкнутых порах спекленного топлива составляет приблизительно 0,035 МПа.

Коэффициент диффузии газа в зерне  $UO_2$ , используемый при расчетах, является кажущимся коэффициентом диффузии, учитывающим как вероятность временного захвата диффундирующего газа малоподвижными внутризеренными пузырями, так и возможность его радиационного или термического перерастворения. Выбор коэффициента диффузии для использования в расчетах должен учитывать характеристики конкретного топлива и реальные параметры облучения. Информация для такого выбора представлена в § 2.3.

Кажущийся коэффициент диффузии зависит от количества и емкости малоподвижных внутризеренных пузырей, являющихся ловушками для диффундирующего газа, т. е. по существу от выгорания. К сожалению, данных зависимости коэффициента диффузии от выгорания, пригодных для использования в расчетах, в настоящее время практически нет, за исключением работы [63], где приведена экспериментальная зависимость коэффициента диффузии стабильных изотопов от выгорания для  $UO_2$  при  $F_d = 1,24 \cdot 10^{13}$  дел/( $см^3 \cdot с$ ) для одной фиксированной температуры облучения  $t_{обл} = 1400$  °С (рис. 2.23).

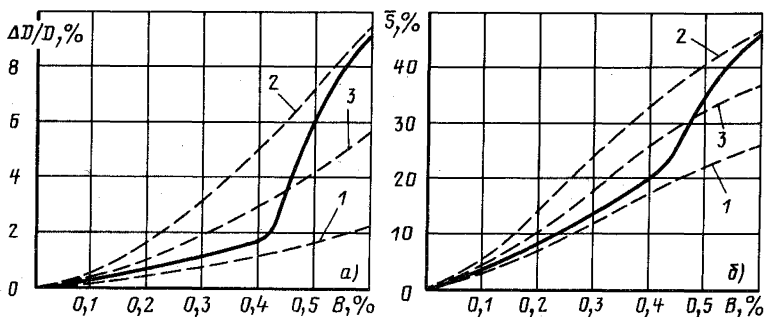


Рис. 4.35. Зависимость деформации оболочки  $\Delta D/D$  (а) и среднего объемного распухания топлива  $\bar{S}$  (б) от выгорания  $B$  при заданном в соответствии с зависимостью на рис. 2.23 законе изменения коэффициента диффузии ГПД в  $UO_2$  (сплошная линия) и при постоянных его значениях (штриховые линии):

$$1 - D^* = D^*_{\text{мин}}; \quad 2 - D^* = D^*_{\text{макс}}; \quad 3 - D^* = \bar{D}^*$$

Резкое уменьшение коэффициента диффузии в начальный период облучения объясняется увеличением концентрации газа в ВЗП, а глубина этого снижения характеризует "емкость" внутризеренных пузырей, достигших концентрации насыщения.

Последующее увеличение коэффициента диффузии при увеличении выгорания объясняется постепенным восстановлением его до исходного значения, по мере того как заполненные газом до насыщения внутризеренные пузыри перестают играть роль ловушек.

Результаты параметрического изучения влияния зависимости коэффициента диффузии ГПД от выгорания на деформацию оболочки и распухание сердечника из  $UO_2$  показаны на рис. 4.35. Здесь нанесены кривые деформирования, рассчитанные для коэффициента диффузии, зависящего от выгорания, как показано на рис. 2.23, а также при различных постоянных коэффициентах диффузии, соответствующих его минимальному ( $D^*_{\text{мин}} = 2,52 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}$ ), максимальному ( $D^*_{\text{макс}} = 7,2 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}$ ) и среднему ( $\bar{D}^* = 2,05 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}$ ) значениям в зависимости  $D^* = f(B)$ . Эти данные показывают, что учет реального вида зависимости  $D^* = f(B)$  и расчет по среднему значению коэффициента диффузии при повышенном выгорании приводит к значительным погрешностям определения деформации ( $\Delta \epsilon_{\theta} / \epsilon_{\theta} \approx \approx 30\%$ ) и распухания ( $\Delta \bar{S} / \bar{S} \approx 20\%$ ).

*Аналитическое предсказание распухания твэлов на основе параметрических расчетов.* При решении проектных задач, связанных с выбором и обоснованием конструкционной схемы твэла, определением предельных ограничений на значения деформации оболочки и режимы его

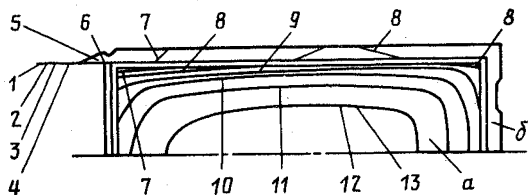


Рис. 4.36. Распределение температуры в топливном сердечнике (а) и эмиттере (б) ЭГЭ:

1 –  $T = 973$  К; 2 – 1089 К; 3 – 1228 К; 4 – 1367 К; 5 – 1505 К; 6 – 1644 К; 7 – 1714 К; 8 – 1783 К; 9 – 1853 К; 10 – 1922 К; 11 – 1992 К; 12 – 2064 К; 13 – 2061 К

эксплуатации, широкое применение в расчетной практике получили подходы, основанные на суперпозиции данных, полученных в результате параметрических расчетов с использованием моделей отдельных процессов и механизмов, в той или иной степени определяющих работоспособность твэла. Расчетное прогнозирование деформации эмиттера электрогенерирующего элемента для термоэмиссионного реактора основывается главным образом на численном моделировании процессов нагружения оболочки внутренним давлением выделяющихся ГПД, термического хrapовика и распухания топлива (см. § 3.3).

В [103] приведены примеры расчетного моделирования взаимодействия топлива с оболочкой ЭГЭ, аналогичного представленному на рис. 3.17. С помощью программы, в которой реализована двумерная модель температурного и прочностного поведения ЭГЭ в вязкоупругом приближении, проведены расчетные оценки вклада каждого из эффектов, приводящих к деформации эмиттера. На рис. 4.36 представлены результаты термического анализа, необходимого для получения распределений температуры в топливном сердечнике и эмиттере. Оценки деформации эмиттера в результате повышения давления газа в центральной полости при отсутствии или закупорке ГОУ проводились с помощью программы, которая моделирует вязкоупругую задачу взаимной деформации эмиттера и топлива. Результаты расчетов, выполненных исходя из заданного давления в центральной полости, равного 345 кПа, показаны на рис. 4.37 и 4.38. Видно, что уже спустя 2,5 ч после приложения давления вследствие ползучести топлива усилия передаются на эмиттер, вызывая его деформацию со скоростью  $2,79 \cdot 10^{-2}$  мм/год. Считается, что деформация может достигать и больших значений в связи с более высоким фактическим давлением газа в центральной полости. Оценки деформации эмиттера за счет эффекта хrapовика по данной программе показывают, что циклическое изменение средней температуры системы эмиттер—топливо на 100 К при переконденсации топлива на оболочку с учетом аксиальной неравномерности температур при-



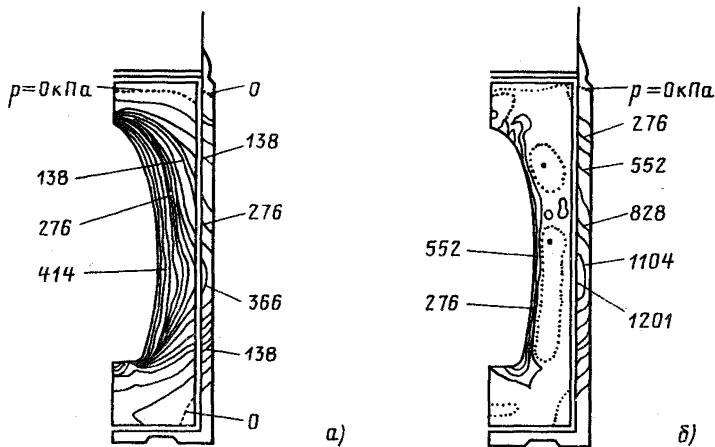


Рис. 4.37. Распределения окружных напряжений в топливном сердечнике и оболочке под воздействием внутреннего давления в центральной полости в начальный момент времени (а) и через 2,5 ч после приложения давления (б)

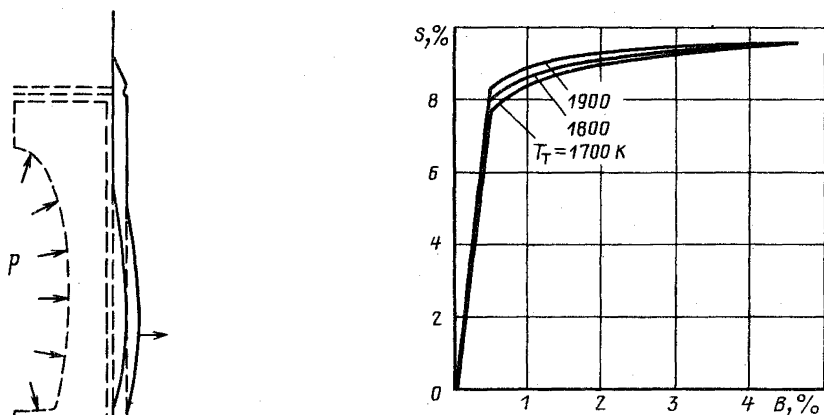


Рис. 4.38. Деформация эмиттера ЭГЭ под воздействием внутреннего давления

Рис. 4.39. Зависимость свободного распухания топлива от выгорания при  $F_D = 6,5 \cdot 10^{12} \text{ дел}/(\text{см}^3 \cdot \text{с})$  и различных температурах поверхности топлива

водит к деформации эмиттера  $1,19 \cdot 10^{-2} \text{ мм}$  в области наиболее нагретого торца ЭГЭ, причем деформация  $5,08 \cdot 10^{-3} \text{ мм}$  за цикл является необратимой. При численном моделировании деформации эмиттера под действием газового распухания топлива серьезное внимание среди

прочих уделяется механизмам формирования системы взаимосвязанных каналов по межзерненным границам топлива, которые, обеспечивая выход ГПД в центральную полость, приводят к насыщению значения распухания. С помощью программы FAST-GRASS, где использованы представления об усилении миграции газа при достижении некоторых критических значений распухания, проделаны обширные параметрические исследования поведения  $\text{UO}_2$ , некоторые результаты которых приведены на рис. 4.39. В этих расчетах было предсказано насыщение свободно распухающего топлива, равное 9,4%. Влияние температуры на распухание топлива анализировалось в [150], где на основе расчетных исследований показано, что сведение распухания до минимума возможно при условии, если все топливо будет работать при температуре выше 1870 К (рис. 4.40). При любом методе расчета пиковые значения скорости распухания приходится на интервал температур 1300–1700 К. Отсюда, в частности, следует, что вариант встроенного в активную зону ТЭП лучше подходит для реакторов большой мощности, рассчитанных на более высокую температуру. Хотя эти и другие аналогичные данные все же не дают исчерпывающей информации для определения предельных ограничений по распуханию, в практике проектирования предпринимаются попытки определения облика реакторных систем с термоэмиссионным преобразователем. Так, в [112] изучалась возможность создания ядерной энергетической установки на основе реактора с встроенным в активную зону термоэмиссионным преобразователем, удовлетворяющей условиям запуска в космос кораблем "Шаттл" и тем ограничениям, которые предсказываются существующими аналитическими моделями. На рис. 4.41 показано, что для предварительного проекта термоэмиссионной установки электрической мощностью 120 кВт и ресурсом 7 лет, разработанного фирмой "Космическая энергетика" (США), а также для ряда систем, работающих на мощностях от одного до многих мегаватт, распухание оказывается ниже, чем дают наиболее прогрессивные расчетные модели и экспериментальные данные.

**Моделирование напряженно-деформированного состояния микротрещин ВТТР.** Рассмотренные в § 3.4 процессы при определенных условиях могут приводить к разрушению покрытия микротрещины и выходу из него продуктов деления. Поэтому для определения работоспособности микротрещин с учетом особых требований к герметичности покрытий, а также особенностей радиационного поведения пироуглерода и карбидов большое значение имеет моделирование НДС покрытий в условиях нагружения оболочки внутренним, а в общем случае и внешним давлениями. В связи с этим одновременно с экспериментальным изучением влияния различных технологических параметров и рабочих факторов на работоспособность микротрещин разрабатываются математические модели, призванные обеспечить выбор и обоснование параметров микротрещин при разработке конструкции и технологии, а также прогнозировании их поведения в процессе эксплуатации [171–173].

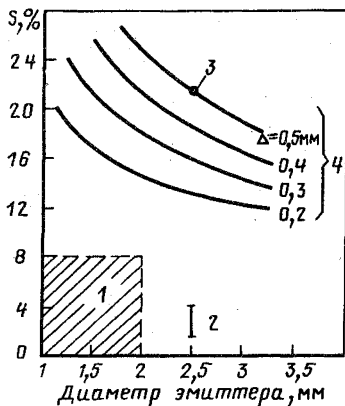
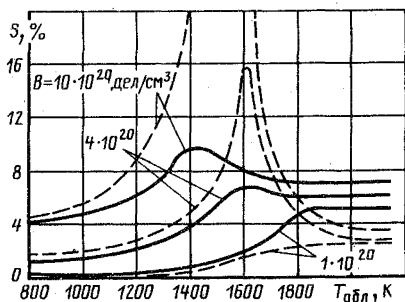


Рис. 4.40. Зависимость распухания  $\text{UO}_2$  от температуры облучения при различном выгорании (при градиенте температуры  $dt/dx = 10^3$  °C/см; гидростатическом давлении  $p_T = 13,7$  МПа;  $F_D = 10^{13}$  дел/( $\text{см}^3 \cdot \text{с}$ );  $L_{\text{зерн}} = 2 \cdot 10^{-3}$  см):

— — расчет по модели, учитывающей повторное растворение; - - - - расчет по модели BUBL

Рис. 4.41. Сравнение допустимых и проектных значений газового распухания топлива:

1 — проектное распухание топлива для энергоустановок мегаваттного класса с ресурсом 5 лет (теоретические данные); 2 — проектное распухание топлива для энергоустановок электрической мощности 120 кВт с ресурсом 7 лет; 3 — проект установки мощностью 120 кВт с термоземиссионным реактором-преобразователем, встроенным в активную зону; 4 — максимально допустимое распухание при плотности топлива 92% теоретической;  $\Delta$  — межэлектродный зазор

Модель [173] учитывает воздействие таких факторов, как газовое давление, распухание зерна, тепловое расширение и формоизменение пироуглеродных слоев под действием нейтронов, а также анизотропию свойств покрытий. Микровзл представляет собой сферический керн, окруженный двумя оболочками из пироуглерода: первая из них пористая, вторая является сосудом высокого давления, она не подвергается воздействию осколков деления, но облучается быстрыми нейтронами и обладает анизотропией свойств. В результате расчетов определяются тангенциальное и нормальное напряжения в плотной оболочке. Сравнение напряжений, возникающих в определенных условиях, с прочностью пироуглерода дает время работы микровзлов до разрушения.

Развитие и уточнение моделей осуществляется в направлении учета радиационной ползучести пироуглерода, в расчет включается слой SiC и увеличивается общее число рассчитываемых слоев [171, 172]. Такие модели удовлетворительно описывают деформацию микровзла в реакторе и позволяют проследить за влиянием на его работоспособ-

ность отдельных конструкционных параметров, отношения Т/Д (прочностной параметр), пористости зерна и первого слоя, анизотропии и т. д.

Типичная математическая модель расчета [171, 172] строится на следующих предположениях: зерн в форме шара окружен сферически симметричными покрытиями; внутреннее покрытие из пористого РуС не несет механической нагрузки и передает все нормальные к своей поверхности напряжения непосредственно силовому покрытию РуС1; упругие постоянные материалов покрытий изотропны и не изменяются в процессе облучения; облучение быстрыми нейтронами вызывает анизотропные изменения размеров покрытий из пироуглерода. При разработке модели обычно учитываются распухание зерна, выделение ГПД из топлива, радиационные анизотропные размерные изменения, радиационная ползучесть и разрушение какого-либо из слоев. Для расчета напряженно-деформированного состояния микротвэлов применяются классические методы теории упругости, основанные на уравнениях равновесия, совместности деформаций и уравнений, описывающих основные законы деформации, которые для расчетной сферически симметричной схемы микротвэла, изображенной на рис. 3.30, имеют вид [171]:

$$\epsilon_r^{(i)} = \epsilon_r^{(i)e} + \eta_r^{(i)} + \int_0^F \dot{\epsilon}_{cr} dF';$$

$$\epsilon_\theta^{(i)} = \epsilon_\theta^{(i)e} + \eta_\theta^{(i)} + \int_0^F \dot{\epsilon}_{c\theta} dF',$$

где  $i$  — номер слоя;  $\epsilon_r^{(i)}$ ,  $\epsilon_\theta^{(i)}$  — деформация  $i$ -го слоя в радиальном и тангенциальном направлениях;  $F$  — флюенс нейтронов;  $\epsilon_r^{(i)e}$ ,  $\epsilon_\theta^{(i)e}$  — упругие составляющие деформации, определенные по закону Гука:

$$\epsilon_r^{(i)e} = -\frac{2\nu_i}{E_i} \sigma_\theta^{(i)}(r, F) + \frac{1}{E_i} \sigma_r^{(i)}(r, F);$$

$$\epsilon_\theta^{(i)e} = \frac{1-\nu_i}{E_i} \sigma_\theta^{(i)}(r, F) - \frac{\nu_i}{E_i} \sigma_r^{(i)}(r, F);$$

здесь  $\nu_i$  — коэффициент Пуассона  $i$ -го слоя;  $E_i$  — модуль упругости  $i$ -го слоя;  $\eta_r^{(i)}$ ,  $\eta_\theta^{(i)}$  — вклад в полную деформацию от размерных изменений материала покрытия, вызванных облучением, аппроксимируется в виде многочлена от флюенса;  $\int_0^F \dot{\epsilon}_c dF'$  — деформация ползучести.

Для пироуглерода принимается линейная зависимость скорости деформации ползучести от напряжений:

$$\begin{aligned} \dot{\epsilon}_{cr}^{(i)} &= \frac{\partial \epsilon_{cr}^{(i)}}{\partial F} = -2K_c^{(i)} \nu_c^{(i)} \sigma_\theta^{(i)}(r, F) + \\ &+ K_c^{(i)} \sigma_r^{(i)}(r, F); \\ \dot{\epsilon}_{c\theta}^{(i)} &= \frac{\partial \epsilon_{c\theta}^{(i)}}{\partial F} = K_c^{(i)} (1 - \nu_c^{(i)}) \sigma_\theta^{(i)}(r, F) - \\ &- K_c^{(i)} \nu_c^{(i)} \sigma_r^{(i)}(r, F), \end{aligned}$$

где  $\nu_c^{(i)}$  – коэффициент Пуассона при ползучести;  $K_c^{(i)}$  – постоянная радиационной ползучести.

Общее решение этих уравнений с учетом уравнений равновесия и совместности выражается в виде

$$\begin{aligned} \sigma_r^{(i)}(r, F) &= A_i(F) + B_i(F)r^{-3} + (2/3)f_i(F)\ln r; \\ \sigma_\theta^{(i)}(r, F) &= A_i(F) - (1/2)B_i(F)r^{-3} + (1/3)f_i(F)(2\ln r + 1), \end{aligned}$$

где  $A_i(F)$  и  $B_i(F)$  – неизвестные функции, подлежащие определению;  $r$  – текущее значение радиуса;

$$f_i(F) = \frac{E_i}{1 - \nu_i} \exp(-D_i F) \int_0^F \dot{\eta}^{(i)}(F') \exp(D_i F') dF';$$

$$D_i = \frac{E_i K_c^{(i)}}{1 - \nu_i} (1 - \nu_c^{(i)});$$

$$\dot{\eta}^{(i)}(F) = \partial \eta^{(i)}(F) / \partial F; \quad \eta^{(i)}(F) = \eta_r^{(i)}(F) - \eta_\theta^{(i)}(F).$$

В качестве граничных условий на наружной поверхности оболочки микротрещала задается внешнее давление на оболочку, а на внутренней – давление от накопившихся газов, выделяющихся из ядра в результате реакции деления  $^{235}\text{U}$ ; на границах раздела слоев ставятся условия сшивки, т. е.

$$\begin{aligned} \sigma_r(a_1, F) &= -p(a_1, F); \quad \sigma_r^{(i)}(b_i, F) = \sigma_r^{(i+1)}(a_{i+1}, F); \\ u^{(i)}(b_i, F) &= u^{(i+1)}(a_{i+1}, F), \quad i = 1 \div (n - 1); \\ \sigma_r^{(n)}(b_n, F) &= -\Pi, \end{aligned}$$

где  $n$  – полное число слоев;  $p(a_1, F)$  и  $\Pi$  – внутреннее и внешнее давления на оболочку соответственно.

Давление газообразных продуктов деления под оболочкой вычисляется как сумма парциальных давлений газов. В частности, если вклад Хе и Кг в газовыделение является определяющим, то общее давление ГПД равно:

$$p(a_1, F) = \sum_j p_j, \quad j = \text{Кг, Хе.}$$

Значения  $p_j$  вычисляются из уравнения состояния Редлиха—Коунга на основании [174]

$$p_j = \frac{RT}{V_j - q_j} - \frac{s_j}{V_j(V_j + q_j)\sqrt{T}},$$

где  $V_j$  — молярный объем газа;  $q_j$  и  $s_j$  — константы уравнения состояния.

Считается, что при начальном флюенсе  $F = 0$  напряжения в покрытиях микротвэла отсутствуют.

На рис. 4.42 показаны полученные при указанных предпосылках расчетные зависимости НДС от флюенса быстрых нейтронов при следующих параметрах микротвэла с трехслойным покрытием (см. рис. 3.30):  
 ядро:  $\text{UO}_2$ , диаметр 500 мкм, плотность 8,0 г/см<sup>3</sup>, пористость 0,1, обогащение 21%;

буферный слой: пористый пироуглерод, толщина 70 мкм, плотность 1,0 г/см<sup>3</sup>, пористость 0,6;

первый силовой слой: плотный пироуглерод, толщина 60 мкм, плотность 1,8 г/см<sup>3</sup>,  $E_1 = 2,9 \cdot 10^5$  МПа,  $\nu_1 = 0,33$ ,  $\nu_c^{(1)} = 0,4$ ,  $K_c^{(1)} = 4,1 \times 10^{-25}$  [нейтр/(см<sup>2</sup> · МПа)]<sup>-1</sup>;

второй силовой слой: карбид кремния, толщина 40 мкм, плотность 3,2 г/см<sup>3</sup>,  $E_2 = 3,2 \cdot 10^7$  МПа,  $\nu_2 = 0,25$ ,  $\nu_c^{(2)} = 0,25$ ,  $K_c^{(2)} = 0,001 \times K_c^{(1)}$  [нейтр/(см<sup>2</sup> · МПа)]<sup>-1</sup>;

третий силовой слой: плотный пироуглерод, толщина 50 мкм, плотность 1,8 г/см<sup>3</sup>,  $E_3 = E_1$ ,  $\nu_3 = \nu_1$ ,  $\nu_c^{(3)} = \nu_c^{(1)}$ ,  $K_c^{(3)} = K_c^{(1)}$  [нейтр/(см<sup>2</sup> · МПа)]<sup>-1</sup>.

При  $F = 1,2 \cdot 10^{21}$  нейтр/см<sup>2</sup> выгорание составило 10%. При сохранении целостности силовых слоев в первом и третьем из них (РyC1 и РyC3) наблюдаются растягивающие напряжения, которые в начале облучения возрастают, а затем частично релаксируют из-за воздействия радиационной ползучести в слое РyC1 или же остаются практически постоянными после некоторого значения флюенса в слое РyC3. Последнее обстоятельство связано с большей по сравнению с РyC3 жесткостью второго слоя  $\text{SiC}_2$  ( $E_{\text{SiC}} \gg E_{\text{РyC}}$ ), что ограничивает возможное перемещение слоя РyC3, в результате чего напряжения уравниваются воздействием радиационной ползучести. Сам слой  $\text{SiC}_2$  подвержен воздействию сжимающихся напряжений, которые с увеличением флюенса

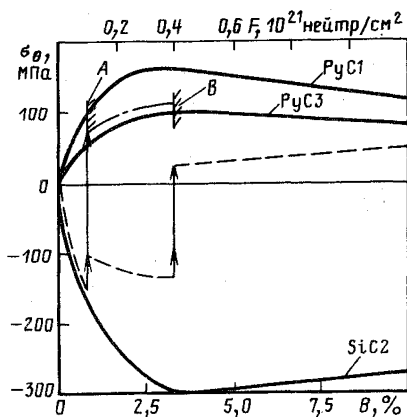


Рис. 4.42. Зависимость напряженного состояния от флюенса быстрых нейтронов при сохранении целостности всех силовых слоев и в случае разрушения слоев из пироуглерода:

— — — — — сохранение целостности силовых слоев; — — — — — напряжение в слое PyC3 после разрушения внутреннего слоя PyC1 (A); — — — — — напряжение в слое SiC2 в результате последовательного разрушения слоев PyC1 (A) и PyC3 (B) [171] (приведены напряжения только на внутренних поверхностях слоев)

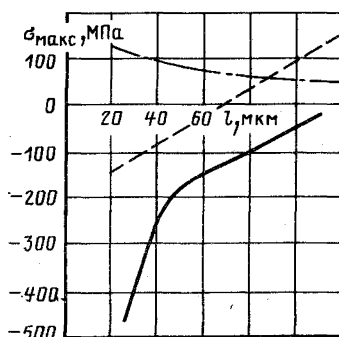


Рис. 4.43. Зависимость максимального напряжения в слое SiC2 от толщины этого слоя  $l$  при различном состоянии других силовых слоев:

— — — — — слои PyC1 и PyC3 сохраняют целостность; — — — — — слой PyC1 разрушен, слой PyC3 не разрушен; — — — — — разрушены оба слоя PyC1 и PyC3

уменьшаются. При разрушении слоев из пироуглерода (штриховые линии на рис. 4.42) картина НДС микровзла меняется. Если при достижении в слое PyC1 предела прочности ( $[\sigma]_{PyC} = 100 \div 200$  МПа) происходит его разрушение, напряжения в остальных слоях изменяются скачкообразно. В слое PyC3 растягивающие напряжения незначительно увеличиваются, а в слое SiC2 сжимающие напряжения заметно уменьшаются. Если же после этого разрушится и третий силовой слой PyC3, то в слое SiC2 напряжения переходят в область растяжения и несколько увеличиваются с ростом флюенса, не превышая предела прочности ( $[\sigma]_{SiC} = 300 \div 400$  МПа) в конце кампании.

Такая качественная картина НДС микровзла почти оптимальной геометрии, структуры и плотности покрытий показывает, что разрушение слоев из пироуглерода не приводит к разрушению микровзла в целом. Основным силовым слоем, предотвращающим разрушение, является слой из карбида кремния. Поэтому оценку работоспособности микровзла целесообразно проводить с учетом НДС, возникающего в слое SiC. Однако при этом следует иметь в виду, что, как отмечалось выше, при разрушении в первом слое пироуглерода увеличива-

ется вероятность повреждения слоя карбида кремния вследствие бомбардировки его продуктами деления, коррозии и возможного взаимодействия ядра с покрытием, что приводит к уменьшению его работоспособности (см. рис. 3.42).

В отношении прочности, с учетом кинетики напряженного состояния, наиболее надежной будет, по-видимому, такая конструкция микротрещины, при которой слой SiC в процессе работы будет находиться в сжатом состоянии, допуская к концу кампании близкие к нулю напряжения или незначительные растягивающие.

На рис. 4.43 показана зависимость максимального напряжения в слое SiC<sub>2</sub> от его толщины, полученная в [171] при тех же условиях, что на рис. 4.42.

При разрушенном слое PuC<sub>1</sub> сжимающие напряжения значительно меньше, но если разрушены оба силовых слоя из PuC, то в слое SiC<sub>2</sub> возникают растягивающие напряжения, что значительно увеличивает вероятность разрушения микротрещины. С ростом толщины слоя SiC<sub>2</sub> разрушение только одного первого слоя PuC<sub>1</sub> приводит к появлению растягивающих напряжений в слое карбида кремния. Поэтому для обеспечения надежной работы микротрещины требуется оптимизировать толщину каждого слоя, рассматривая НДС SiC<sub>2</sub> при разрушенных и неразрушенных слоях из PuC, принимая равную вероятность разрушения для растягивающих и сжимающих напряжений.

Таким образом, главная особенность работы микротрещины в условиях облучения заключается в том, что радиационные изменения размеров слоев пироуглерода обеспечивают сжимающее воздействие этих покрытий на промежуточный слой SiC, что обуславливает его высокую работоспособность. Этот факт настолько значителен, что, несмотря на высокое давление ГПД и технологических газов, слой SiC оказывается фактически разгруженным в процессе эксплуатации. И только при разрушении слоев пироуглерода в конце кампании появляется вероятность разрушения слоя SiC от растягивающих напряжений. Выбирая допустимую вероятность разрушения микротрещины при рассмотрении кинетики напряженно-деформированного состояния для различных случаев разрушения силовых слоев, можно определить оптимальный для обеспечения работоспособности трещины диапазон изменения толщины каждого слоя.



## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Выхотемпературное ядерное тошиво/ Р.Б. Котельников, С.Н. Башлыков, А.И. Каштанов, Т.С. Меньшикова. М.: Атомиздат, 1978.
2. Флейшер Р.Л., Прайс П.Б., Уокер Р.М. Треки заряженных частиц в твердых телах. М.: Энергоиздат, 1981.
3. Hoh A., Matzke H.J. Fission-enhanced self-diffusion of uranium in  $UO_2$  and  $UC$ // J. Nucl. Mater. 1973. Vol. 48. P. 157-164.
4. Matthews J.R., Wood M.H. A simple operational gas release and swelling model// J. Nucl. Mater. 1980. Vol. 91. P. 241-256.
5. Федоров Г.Б., Смирнов Е.А. Диффузия в реакторных материалах. М.: Атомиздат, 1978.
6. Turnbull J.A. The effect of grain size of the swelling and gas release properties of  $UO_2$  during irradiation// J. Nucl. Mater. 1974. Vol. 50. P. 62-68.
7. Hastings I.J., Scobery J.A., Mackenzie K.// J. Nucl. Mater. 1979. Vol. 82. P. 435-438.
8. Hargreaves R., Collins D. // JBNES. 1976. Vol. 15, N 4. P. 311.
9. Ohse R.W.// J. Chem. Phys. 1966. Vol. 49, N 4. P. 1375-1378.
10. J. Amer. Ceram. Soc./ Tenney V.J. et. al., 1971. Vol. 54, N 7. P. 327.
11. Мулепов Л.Н.// Инж.-физ. журн. 1978. Т. XXX, № 1. С. 82.
12. Nichols F.A. Kinetics of diffusional motion of pores in solids// J. Nucl. Mater. 1969. Vol. 30. P. 143.
13. Warner H.R., Nichols F.A. A statistical fuel swelling and fission gas release model// Nucl. Applic. and Technology. 1970. Vol. 9. P. 148.
14. Nichols F.A. Theory of columnar grain growth and central void formation in oxide fuel rods// J. Nucl. Mater. 1967. Vol. 22. P. 214-222.
15. Buescher B.J., Meyer R.O. // Ibid. 1974. Vol. 50. P. 91-97.
16. Sens P.F. // Ibid. 1972. Vol. 43. P. 293-307.
17. Clement C.F.// Ibid. 1977. Vol. 68. P. 63-68.
18. Ronchi C., Sari C. //Ibid. 1974. Vol. 50. P. 91.
19. Chubb W., Storhok V.W., Keller D.L.// Ibid. 1972. Vol. 44. P. 136-152.
20. Baker C. The migration of intragranular fission gas bubbles in irradiated uranium dioxide// J. Nucl. Mater. 1977. Vol. 71. ). 117-123.
21. Robertson J., Ross A., Notley M., Mc Ewan J. // Ibid. 1962. Vol. 7. P. 225-262.
22. A Review of Creep behaviour of ceramic nuclear fuels/ M.S. Seltzer, J. S. Perrin, A.H. Clauer, B.A. Wilcox// Reactor Technology. 1971. Vol. 14. P. 99-135.
23. Ассмани Х., Штеле Х. // Атомная техника за рубежом. 1980. № 1. С. 25.
24. Kershner C.J. Гелиевая проницаемость тантала MLD 1846, TID 4500, UC-4 (1972).
25. Суреняц В.В. Растворы инертных газов в твердых телах// Журн. физ. химии. 1971. Т. XLV. Вып. 2. С. 2985.
26. Kumar A., Garner F.A. Dual ion irradiation: impact of the conflicting roles of helium on void nucleation Twelfth International Symposium on Effects of Radiation on Materials. Williamsburg 1984. Report HEDL-SA-3025.

27. Garner F.A. Overview of the swelling behavior of 316 stainless steel. Symposium on optimizing materials for nuclear applications. Los Angeles 1984. Report HEDL-SA-3329.

28. Мартыненко Ю.В. Теория блистеринга. М.: Препринт ИАЭ-3145. 1979.

29. Ross A.M. Irradiation behaviour of fission-gas bubbles and sintering pores in  $UO_2$ // J. Nucl. Mater. 1969. Vol. 30. P. 134-142.

30. Baker C. The fission gas bubble distribution in uranium dioxide from high temperature irradiated SGHWR fuel pins// Ibid. 1977. Vol. 66. P. 283.

31. Whapham A.D., Sheldon B.E. Electron microscope observation of the fission-gas bubble distribution in  $UO_2$ . Report AERE-R-4970. 1965.

32. Pati S.R., Dapht M.J., O'Boyle D.R. Re-solution-controlled fission-gas behaviour in  $UO_2$  irradiated in a fast flux// J. Nucl. Mater. 1974. Vol. 50. P. 227.

33. Turnbull J.A., Cornell R.M. The resolution of gas atoms from bubbles during the irradiation of  $UO_2$ // J. Nucl. Mater. 1970. Vol. 36. P. 161-168.

34. Turnbull J.A. The distribution of intragranular fission gas bubbles in  $UO_2$  during irradiation// Ibid. 1971. Vol. 38. P. 203-212.

35. Cornell R.M. An electron microscope examination of matrix fission gas bubbles in irradiated  $UO_2$ // Ibid. 1971. Vol. 38. P. 319.

36. Manley A.J. Gas bubbles and porosity in irradiated  $UO_2$ . TRG Report 2539(S), oct. 1974.

37. Ronchi C., Matzke H.J.// J. Nucl. Mater. 1972. Vol. 45. P. 15-28.

38. Wood M.H., Hayns M.R. Factors influencing fission gas release and swelling in nuclear fuels. Report AERE-R8153. 1975.

39. Levy V., Charles M., Hillairet J.// Phil. Mag. 1973. Vol. 28. P. 481-484.

40. Turnbull J.A., Cornell R.M. The re-solution of fission-gas atoms from bubbles during the irradiation of  $UO_2$  at an elevated temperature// J. Nucl. Mater. 1971. Vol. 41. P. 156-160.

41. Greenwood G.M.// Ibid. 1959. Vol. 4. P. 305.

42. Whapham A.D. On the formation of gas bubbles in fissile material during reactor irradiation. Report AERE-R6595. 1970.

43. Особотугонплавкие элементы и соединения: Справочник/ Р.Б. Котельников, С.Н. Башлыков, З.Г. Галиакбаров, А.И. Кашганов. М.: Металлургия, 1969.

44. Nelson R.S. The stability of gas bubbles in an irradiations environment// J. Nucl. Mater. 1969. Vol. 31. P. 153.

45. Turnbull J.A., Tucker M.O. Swelling in  $UO_2$  under conditions of gas release// Philosophical Magazine. 1974. Vol. 30. P. 47-63.

46. The release of radioactive gases from uranium dioxide during irradiation// J.A. Turnbull, C.A. Friskney et. al.// J. Nucl. Mater. 1977. Vol. 67. P. 301-306.

47. Turnbull J.A., Friskney C.A. The relation between microstructure and the release of unstable fission products during high temperature irradiation// Ibid. 1978. Vol. 71. P. 238-248.

48. Zimmermann H. Investigation of swelling and fission gas behaviour in uranium dioxide// Ibid. 1978. Vol. 75. P. 154-161.

49. Ritzman R.L., Markworth A.J., Oldfield W., Chubb W. Interpretations of fission gas behaviour in refractory fuels// Nucl. Appl. and Technol. 1970. Vol. 9. P. 167.

50. Баранов И.А., Кривохатский А.С., Обнорский В.В. Механизм распыления материалов тяжелыми многозарядными ионами-осколками деления// Журн. техн. физики. 1981. Т. 51. Вып. 12. С. 2457.

51. Carrol R.M., Sisman O. In-pile fission gas release from single-crystal  $UO_2$ // Nucl. Sci. and Engng. 1965. Vol. 21. P. 147.

52. Ластман Б. Радиационные явления в двуокиси урана. М.: Атомиздат, 1964.

53. Speight M.V.// Nucl. Sci. and Engng. 1969. Vol. 37. P. 180-185.

54. Ham F.S.// J. Phys. Chem. Solids. 1958. Vol. 6. P. 335.

55. The characteristics of fission gas release from monocrystalline uranium dioxide during irradiation/ C. Friskney et al.// J. Nucl. Mater. 1977. Vol. 68. P. 186-192.

56. Miekeley W., Felix F.W.// J. Nucl. Mater. 1972. Vol. 42. P. 297.
57. Stevens W.H., McEwan J.R., Ross A.M. US Report TLD-7610, 1960.
58. Burnes R.H., Kanglaski M., Melehan J.B., Rough F.A. US Report BMI-1533, 1961.
59. Пономарев-Стенной Н.Н., Хрулев А.А. Утечка продуктов деления из высокотемпературных топливных материалов// Доклад на третьей международной конференции по термозмиссии. Юлих, ФРГ, 5-9 июля 1972 г.
60. Friskney C.A., Turnbull J.A. The characteristics of fission gas release from uranium dioxide during irradiation// J. Nucl. Mater. 1979. Vol. 79. P. 184-198.
61. Speight M.V., Turnbull J.A.// J. Nucl. Mater. 1977. Vol. 68. P. 244-249.
62. Killen J.C.// Ibid. 1975. Vol. 58. P. 39.
63. The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide/ J.A. Turnbull, C.A. Friskney, J.R. Findley et al.// Ibid. 1982. Vol. 107. P. 168-184.
64. Самсонов Б.В.// Атомная энергия. 1971. Т. 31. Вып. 2. С. 136.
65. McEwan J.R., Stevens W.H. Xenon diffusion in uranium dioxide// J. Nucl. Mater. 1964. Vol. 11. P. 77.
66. Speight M.V. A calculation on the size distribution of intragranular bubbles in irradiated  $UO_2$ // Ibid. 1971. Vol. 38. P. 236.
67. Davies D., Long G. UKA EA Report AERE-R 4347, 1963.
68. Lawrence G.T. A review of the diffusion coefficient of fission-product rare gases in  $UO_2$ / J. Nucl. Mater. 1978. Vol. 71. P. 195-218.
69. Iwamoto K., Oishi J. Analysis of fission gas escape from reactor fuel during isothermal irradiation// J. Nucl. Sci. and Technol. 1968. Vol. 5. P. 387-396.
70. Cornell R.M.// Philosophical Magazine. 1969. Vol. 19. P. 539.
71. Займовский А.С., Калашников В.В., Головнин И.С. Тепловыделяющие элементы ядерных реакторов: 2-е изд. М.: Атомиздат, 1966.
72. Цыканов В.А., Давыдов Е.Ф. Радиационная стойкость тепловыделяющих элементов ядерных реакторов. М.: Атомиздат, 1977.
73. Analysis and Choice of Characteristics of the HTGR Spherical Fuel Elements/ V.N. Grebennik, Yu. G. Degaltsev, V.A. Karpov et al.// Proc. IAEA SM on Gas-Cooled Reactor Fuel Development and Spent Fuel Treatment. Moscow. October. 1983. P. 5-18.
74. Material Development for thermionic fuel-cladding systems/ L. Yang. R.G. Hudson, H. Johnson et al.// Proc. 3rd Intern. Conf. on Thermionic Electrical Power Generation. Vol. 2. Juelich. 1972. P. 873-893.
75. Испытание опытных твэлов типа БН-600 в реакторе БОР-60 до различных выгораний/ М.М. Антипина, Ю.К. Бибилашвили, И.С. Головнин и др.// Атомная энергия. 1976. Т. 40. Вып. 1. С. 16-27.
76. Головнин И.С., Бибилашвили Ю.К., Меньшикова Т.С. Разработка тепловыделяющих элементов для энергетических реакторов на быстрых нейтронах// Атомная энергия. 1973. Т. 34. Вып. 3. С. 147-153.
77. Hoffman H. Crack formation, crack healing and porosity redistribution during Irradiation of  $UO_2$  and  $(U, Pu)O_2$ // J. Nucl. Mater. 1974. Vol. 54. P. 9-23.
78. Лебедев И.Г. и др. Препринт НИИАР, П-166, 1972.
79. Кузьмин В.И., Лебедев И.Г. Влияние температуры на набухание сердечника из  $UO_2$ ,  $UO_2 - PuO_2$ // Атомная энергия. 1975. Т. 38. Вып. 1. С. 11-15.
80. Banks D.A. Some observations of density and porosity changes in  $UO_2$  fuel irradiated in water-cooled reactors// J. Nucl. Mater. 1974. Vol. 54. P. 97-107.
81. Assman H., Mansel R. The matrix swelling rate of  $UO_2$ // Ibid. 1977. Vol. 68. P. 360-364.
82. Van Vliet J., Hoppe N. Oxide behaviour modelling progress in COMETHE. IAEA SM on Water Fuel Element Performance Computer Modelling. Preston, March 15-19, 1982, Paper 23.

83. Van Vliet J., Hoppe N. Effect of fuel characteristics on swelling and fission gas release. IAEA SM on Water Fuel Element Performance Computer Modelling. Blackpool, UK, March 16–21, 1980.

84. Bouffieux P., De Meulemeester E. Benchmarking results of the COMETHE code// Nucl. Engng. and Design. 1980. Vol. 56. P. 143–150.

85. Лихачев Ю.И., Пупко В.Я. Прочность тепловыделяющих элементов ядерных реакторов. М.: Атомиздат, 1975.

86. Труды симпозиума СЭВ "Состояние работ по созданию АЭС с реакторами на быстрых нейтронах/ О.Д. Казачковский и др. Обнинск: Изд. ФЭИ. Т. 2. 1967. С. 425.

87. Результаты испытания в реакторе BOR-60 твзлов с карбидным топливом/ В.А. Цыканов, В.М. Грязев, Е.Ф. Давыдов и др.// Атомная энергия. 1977. Т. 42. Вып. 5. С. 378–382.

88. Chubb W., Storhok V.W., Keller D.L. Factors affecting the swelling of nuclear fuels at high temperature// Nucl. Technology. 1973. Vol. 18. P. 231–256.

89. Англо-советский симпозиум/ И.С. Головин и др. 1975.

90. Самсонов Б., Сулаберидзе В. Газовыделение из окисного ядерного топлива. Обзор, вып. В 16, НИИАР, Дмитровград, 1977.

91. Rest J. SST: A computer code to predict fuel response and fission product release from light-water reactor fuels during steady-state and transient conditions// Trans. Am. Nucl. Soc. 1975. Vol. 22. P. 462–463.

92. Mikhlin E. Ya., Chkuaseli V.F. Gas release and swelling in oxide fuel; modelling of the kinetics of gas porosity development// J. Nucl. Mater. 1982. Vol. 105. P. 223–230.

93. Potential causes of failures associated with power changes in LWR's/P. Bouffieux, J. Van Vliet, P. Deramaix, M. Lippens// Ibid. 1979. Vol. 87. P. 251–258.

94. Bouffieux P., De Meulemeester E. Prediction of fission gas release at high burn up. ANS topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance. Portland (Oregon), April 29 – May 2, 1979.

95. Лузанова Л.М., Славягин П.Д. Выход радиоактивных продуктов деления из негерметичных твзлов на основе двуоксида урана. М.: Препринт ИАЭ-3723/4. 1983.

96. Фадин С.Ю., Мурашов В.Н., Яковлев В.В. Экспериментальное исследование давления в твзлах контейнерного типа с топливом из двуоксида урана. М.: Препринт ИАЭ-4133/4. 1985.

97. Коломыткин В.В. Расчетно-теоретическое исследование работоспособности твзлов ядерных реакторов. М.: Препринт ИАЭ-4190/4. 1985.

98. Захарко Ю.А., Прошкин А.А. О возможности и значении аналитического подхода при анализе напряженно-деформированного состояния тепловыделяющих элементов энергетических реакторов. М.: Припринт ИАЭ-4244/4. 1986.

99. Опыт создания, эксплуатации и пути совершенствования АЭС с ВВЭР/ Ф.Я. Овчинников, Ю.В. Марков, В.А. Сидоренко и др.// Атомная энергия. 1983. Т. 54. Вып. 4. С. 249–253.

100. Исследование физико-химического взаимодействия окисного топлива с оболочками твзлов быстрого реактора/ В.А. Цыканов, Е.Ф. Давыдов, Е.П. Ключков и др.// Атомная энергия. 1984. Т. 56. Вып. 4. С. 195–199.

101. Adamson M.G., Kangilaski M. Chemical Compatibilities of space reactor fuels with candidate cladding and coolant materials// Trans. Amer. Nucl. Soc. 1984. Vol. 46. P. 337–338.

102. Lundberg L.B., Klopp W.D. Molybdenum and tungsten alloys for space nuclear power systems// Ibid. 1984. Vol. 46. P. 335.

103. Begg L.L., Wetch J.R., Nelin C.J. Thermionic fuel element endurance enhancement// In: Proc. 19th Intersociety Energy Conversion Engineering Conference. Vol. 3. San Francisco, 1984. P. 2276–2281.

104. Dutt D.S., Cox C.M. Failure experience in refractory alloy-cald fuel pins applicable to space nuclear power// Trans. Amer. Nucl. Soc. 1984. Vol. 46. P. 333-335.
105. Horner M.H., Grebetz J.C., Kay J. Multicell thermionic fuel element fabrication technology// Proc. 3rd International Conference on Thermionic Electrical Power Generation. Vol. 2, Juelich. 1972. P. 491-500.
106. Данилов Ю.И., Каретников Д.В. V заседание международной группы связи по термомиссионному методу генерирования электроэнергии// Атомная энергия. 1970. Т. 29. Вып. 3. С. 225-227.
107. Holland J., Gulden T. Thermionic fuel element technology status// Trans. Amer. Nucl. Soc. 1984. Vol. 46. P. 331-333.
108. Испытания многоэлементных термоэмиссионных экспериментальных сборок/ В.И. Бержатый, Н.А. Грибоедов, В.П. Грицаенко, и др.// Атомная энергия. 1971. Т. 31. Вып. 6. С. 585-588.
109. Holland J.W. Thermionic fuel element development status summary// In: Proc. 3rd International Conference on Thermionic Electrical Power Generation. Vol. 2. Juelich. 1972. P. 465-477.
110. Дегальцев Ю.Г., Кузнецов В.Ф., Пономарев-Степной Н.Н. Моделирование газового распухания твэлов// Атомная энергия. 1984. Т. 56. Вып. 3. С. 137-138.
111. Hilbert R.F. et al.// J. Nucl. Mater. 1971. Vol. 38. P. 26.
112. Thermionic space reactors overview/ J. Wetch, N. Rasor, E. Britt, G. Fitzpatrick// Proc. 18th Intersociety Energy Conversion Engineering Conference. Vol. 1. N. Y. 1983. P. 170-178.
113. Корнилов В.А., Сухов Ю.И., Юдицкий В.Д. Метод расчета температурных полей топливного сердечника термоэмиссионного электрогенерирующего элемента// Атомная энергия. 1980. Т. 49. Вып. 6. С. 393-394.
114. Holland J.W., Yang L. Technology status of thermionic fuel elements for space nuclear power// Proc. 19th Intersociety Energy Conversion Engineering Conference. Vol. 3. San Francisco. 1984. P. 2282-2292.
115. Александров А.П., Пономарев-Степной Н.Н. Атомная энергетика и технический прогресс// В кн.: Атомной энергетике 20 лет. М.: Атомиздат. 1974.
116. Быстрые и тепловые реакторы для производства электроэнергии и высокотемпературного тепла/ А.П. Александров, Н.Н. Пономарев-Степной, Е.С. Глушков и др. - Докл. (СССР), представленный на международный симпозиум МАГАТЭ по реакторам с газовым охлаждением. Юлих, 1975.
117. Hackstain K.G. Recent development in the manufacture of spherical fuel elements for high-temperature reactors. Vienna, 1969.
118. Состояние и перспективы развития работ по ВТГР в СССР. Доклад ТС-109/3 на заседании технического комитета по ВТГР. МАГАТЭ, Вена, 1977// Атомно-водородная энергетика и технология. Вып. 2. М.: Атомиздат. 1979. С. 57-66.
119. Reactor tests of spherical fuel elements and HTGR microfuel elements and study of their state after irradiation/ V.A. Gurin, Yu. G. Degal'tsev, N.N. Ponomarev-Stepnoy et al.// Proc. IAEA SM on Gas-Cooled Reactor Fuel development and Spent Fuel Treatment. Moscow, October. 1983. P. 226-243.
120. Röllig K., Theymann W. Operational requirements of spherical HTR fuel elements and their performance// Ibid. P. 19-39.
121. Бедениг Д. Газоохлаждаемые высокотемпературные реакторы: Пер. с нем. М.: Атомиздат. 1975.
122. Высокотемпературные реакторы с гелиевым теплоносителем/ Н.Н. Пономарев-Степной, А.Н. Проценко, В.Н. Гребенник и др.// Атомно-водородная энергетика и технология. Вып. 1. М.: Атомиздат. 1978. С. 80-108.
123. Хрулев А.А. Примеси в гелиевом теплоносителе высокотемпературных газоохлаждаемых реакторов// Атомно-водородная энергетика и технология. Вып. 6. М.: Энергоатомиздат. 1984. С. 3-76.
124. Microfuel elements and fuel elements studies with the use of pre-irradiation/ N.N. Ponomarev-Stepnoy, A.A. Khroulev, G.V. Momot et al.// Proc. IAEA SM on Gas-

Cooled Reactor Fuel Development and Spent Fuel Treatment, Moscow. October. 1983. P. 212-225.

125. Изотермические петлевые испытания микротопливных элементов ВТГР/ А.Н. Гудков, В.М. Колобашкин, А.А. Котляров и др.// Вопросы атомной науки и техники. Сер. Атомно-водородная энергетика. Вып. 1(4). М.: Изд. ИАЭ. 1978. С. 149-152.

126. Экспериментальное исследование механизма выхода газообразных продуктов деления из микротопливных элементов ВТГР/ А.Н. Гудков, В.М. Колобашкин, М.А. Коптев и др.// Вопросы атомной науки и техники. Сер. Атомно-водородная энергетика и технология. Вып. 2(7). М.: Изд. ИАЭ. 1980. С. 52-55.

127. Махова В.А., Хрулев А.А., Черников А.Г. Топливо и твэлы для высокотемпературных реакторов// Высокотемпературные газоохлаждаемые реакторы за рубежом. М.: ЦНИИатоминформ. 1977. АИНФ-441.

128. Направления исследований по усовершенствованию топлива реактора HTGR/ В.А. Махова, А.А. Хрулев, А.Г. Черников и др. - Там же, 1979. АИНФ-501.

129. Металлографические исследования микротвэлов ВТГР после реакторных испытаний в канале КАРАТ/ Ю.Г. Дегальцев, А.А. Митрофанский, Ю.М. Уткин и др.// Вопросы атомной науки и техники. Сер. Атомно-водородная энергетика и технология. Вып. 2(12). М.: Изд. ИАЭ. 1982. С. 79-83.

130. Структурные исследования микротвэлов, облученных в канале КАРАТ-4/ И.С. Алексеева, Ю.А. Веселкин, Ю.Г. Дегальцев и др.// Вопросы атомной науки и техники. Сер. Атомно-водородная энергетика и технология. Вып. 1(17). М.: Изд. ИАЭ. 1984. С. 59-65.

131. Bokros J.C., Stevens D.W.// Carbon. 1971. Vol. 9, N 19. P. 19-37.

132. Каае J.L., Bokros J.C., Stevens D.W.// Carbon. 1972. Vol. 10. N 5. P. 361-370.

133. Radiation-induced dimensional changes and creep in carbonaceous materials/ J.C. Bokros, G.L. Guthrie, R.W. Dunlap, A.S. Schwartz/ J. Nucl. Mater. 1969. Vol. 31. P. 25-47.

134. Влияние реакторного облучения на микроструктуру пироуглеродных покрытий/ И.С. Алексеева, А.А. Бабад-Захряшин, Ю.Г. Дегальцев и др.// Атомная энергия. 1984. Т. 57. Вып. 2. С. 124-126.

135. Schenk W., Naoumidis A. The behaviour of spherical HTR fuel elements under accident conditions// Proc. IAEA SM on Gas-Cooled Reactor Fuel Development and Spent Fuel Treatment. Moscow. October. 1983. P. 264-280.

136. Bongartz K., Nabielek H. A universal model for coated particle failure// SMIRT 6, Paper C 4/2, 1981.

137. Martin D.G., Nabielek H. A proposed model for irradiated TRISO-coated particle high-temperature failure// KFA-HVK-TN 17/82. September. 1982.

138. Тутнов А.А. Математические модели твердого деформируемого тела в условиях нейтронного облучения// Вопросы атомной науки и техники. Сер. Реакторное материаловедение. Вып. 2(2). М.: Изд. ВНИИНМ. 1978. С. 3-18.

139. De Meulemeester E., Van Vliet J. General description and organization of COMETHE III-J// Nuclear Engineering and Design. 1980. Vol. 56. P. 71-76.

140. Кузнецов В.Ф. Методика и программа расчета набухания твэла с керамическим топливом. М.: Преприят ИАЭ-3275/5, 1980.

141. Арганович В.М., Михлин Э.Я., Семенов Л.П.// Атомная энергия. 1963. Т. 15. Вып. 5. С. 393.

142. Prajoto P., Wazzan A.R., Okrent D. Computer modelling of steady state fission gas behaviour in carbide fuels// Nucl. Eng. and Design. 1978. Vol. 48. P. 461-495.

143. Wood M.H., Hayns M.R. Report AERE-R 8012. 1975.

144. Wood M.H. An analysis of observations of fission gas bubble distributions in fuel// J. Nucl. Mater. 1979. Vol. 82. P. 257-263.

145. Wood M.H. Modelling bubble nucleation and fission-induced re-solution in nuclear fuel// Ibid. P. 244-270.

146. Wood M.H., Matthews J.R. A simple operational gas release and swelling model// J. Nucl. Mater. 1980. Vol. 91. P. 35–40.
147. Tucker M.O. Relative growth rates fission-gas bubbles on grain faces// Ibid. 1978. Vol. 78. P. 17–23.
148. Tucker M.O. The growth of Grain edge porosity in irradiated UO<sub>2</sub>// Ibid. 1979. Vol. 79. P. 206–213.
149. Harrison J.W. Report AERE-R 10344. Harwell. Oct. 1981.
150. Dollins C.C., Nuchols F.A. Swelling and gas release in UO<sub>2</sub> at low and intermediate temperatures// J. Nucl. Mater. 1977. Vol. 66. P. 143–157.
151. Mikhlin E. Ya. The mobility of intragranular gas bubbles in uranium dioxide// Ibid. 1979. Vol. 87. P. 405–408.
152. Baker C. The fission gas bubble distribution in a mixed oxide fast reactor fuel pin// Ibid. 1978. Vol. 75. P. 105–109.
153. Лихачев Ю.И., Звонарев В.П. Распухание делящихся материалов в неравномерных температурных и нейтронных полях// Атомная энергия. 1969. Т. 27. Вып. 3. С. 196–200.
154. Тутнов А.А., Ткачев В.В. Методы математического моделирования распухания и газовыделения топливных материалов твэлов// Вопросы атомной науки и техники. Сер. Реакторное материаловедение. Вып. 2(2). М.: ВНИИНМ. 1978. С. 19–29.
155. Тутнов А.А., Ульянов А.И., Желтухин К.К. Расчетное моделирование распухания топливных материалов по модели квазистатических пор. М.: Препринт ИАЭ-3999/4. 1984.
156. Bauer A. A model for the high temperature swelling of clad oxide fuel// Nucl. Technol. 1972. Vol. 14. P. 65–70.
157. Борисов В.И. Расчетные модели механического поведения цилиндрических твэлов в случае осесимметричного напряженно-деформированного состояния. М.: Препринт ИАЭ-3311/4. 1980.
158. Isothermal grain growth kinetics in sintered UO<sub>2</sub> pellets/ J.B. Ainscough, B.W. Oldfield, J.O. Wake// J. Nucl. Mater. 1973/74. Vol. 49. P. 117–128.
159. Van Vliet J., Billaux M. Comparison with experiment of COMETHE III-L fuel rod behaviour predictions// IAEA SM on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling. Preston. March 15–19. 1982. Paper 24.
160. De Meulemeester E., Bouffieux P., Demeester J. Effects of uncertainties of experimental data in the benchmarking of a computer code// IAEA SM on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling. Blackpool, UK, March 16–21, 1980.
161. Billaux M., Van Vliet J. Comethe III–M for transient fuel rod behaviour prediction// IAEA SM on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling. Preston. March 15–19. 1982.
162. Тепловыделение в ядерном реакторе/ Е.С. Глушков, В.Е. Демин, Н.Н. Пономарев-Степной, А.А. Хрулев. Под ред. Н.Н. Пономарева-Степного. М.: Энергоатомиздат, 1985.
163. Распределение энерговыделения в топливном сердечнике твэлов/ Н.Н. Пономарев-Степной, А.М. Крутов, В.А. Лобынцев, В.И. Носов// Атомная энергия. 1973. Т. 34. Вып. 3. С. 197–198.
164. Кузнецов В.Ф., Лобынцев В.А. Радиально-азимутальное распределение энерговыделения в толстом блоке гетерогенного реактора. М.: Препринт ИАЭ-3029. 1978.
165. Носов В.И., Компаниец Г.В., Петрушенко Р.П. Комплекс программ РНК для расчета гетерогенных реакторов с блоками сложного состава. М.: Препринт ИАЭ-3189. 1979.
166. Кузнецов В.Ф. Распределение температуры в топливном сердечнике и оболочке при лучистом теплообмене между ними// Атомная энергия. 1979. Т. 47. Вып. 6. С. 410–411.

167. Roberts J.T. et al.// ANL-8028, 1973.
168. Dienst W.// J. of Nucl. Mater. 1977. Vol. 65. P. 1-8.
169. Gear C.W. The automatic integration of stiff ordinary differential equations// In: Information Processing 68. Amsterdam: North-Holland 1969. P. 187-193.
170. Зубарев П.В., Тачкова Н.Г. Повышение жаропрочности монокристаллических тугоплавких металлов// Вопросы атомной науки и техники. Сер. Атомное материаловедение. Вып. 5 (16). М.: Изд. ВНИИНМ. 1982. С. 27-30.
171. Пономарев-Степной Н.Н., Сазыкина Т.А., Тихонов Н.И. Методы расчета напряженно-деформированного состояния микротрещин ВТГР и выбор их конструкции// Атомная энергия. 1984. Т. 56. Вып. 2. С. 77-81.
172. Walther H. On mathematical models of calculating the mechanical behaviour of coated fuel particles// Nucl. Eng. and Design. 1972. Vol. 18. P. 11-39.
173. Prados J.W., Scott I.L. Mathematical model for predicting coated particle behaviour// Nucl. Appl. 1966. Vol. 2. P. 402.
174. Shah K., Thodos G.// Industr. Engng. Chem. 1965. Vol. 57. P. 3.



**НАУЧНОЕ ИЗДАНИЕ**

**Юрий Георгиевич Дегальцев**  
**Николай Николаевич Пономарев-Степной**  
**Валентин Федорович Кузнецов**

**ПОВЕДЕНИЕ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА  
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ**

Редактор *О. А. Степеннова*  
Художественный редактор *Б. Н. Тумин*  
Технические редакторы *Г. Н. Лядухина, Т. Н. Тюрина*  
Корректор *С. В. Малышева*  
Оператор *О. В. Канатникова*  
ИБ № 2152

Набор выполнен в Энергоатомиздате на Композере ИБМ-82. Подписано в печать 15.06.87. Т-13482.. Формат 60 x 88 1/16. Бумага офсетная № 1. Печать офсетная. Усл. печ. л. 12,74. Усл. кр.-отт. 12,98. Уч.-изд. л. 14,34. Тираж 1530 экз. Заказ 2070. Цена 2 р. 90 к.

Энергоатомиздат, 113114, Москва, М-114, Шлюзовая наб., 10  
Московская типография № 9 Союзполиграфпрома при Государственном комитете СССР по делам издательств, полиграфии и книжной торговли  
109033, Москва, Ж-33, Волоцкая ул., 40