

раметров нейтронной кинетики могут выполняться в различных сочетаниях по записям типичных переходных процессов реактора. При этом удастся оценить некоторые параметрические комплексы, которые обычно определяются только расчетами. Это дает новые возможности для сопоставления экспериментальных и расчетных результатов. Практически для оценки удобно регистрировать переходные процессы в координатах скорость—мощность, поскольку на этой фазовой плоскости наглядно отображаются используемые для идентификации участки переходного процесса.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Могильнер А.И., Фокин Г.Н., Чайка Ю.В., Кузнецов Ф.М. Применение малых ЭВМ для измерения реактивности. — Атомная энергия, 1974, т. 36, вып. 5, с. 358—361.
2. Юферов А.Г., Ибрагимов Р.Л. Реактиметр как адаптивный цифровой фильтр. — Там же, 2005, т. 98, вып. 4, с. 253—260.
3. Кипин Дж. Физические основы кинетики ядерных реакторов. М.: Атомиздат, 1967.
4. Юферов А.Г. К задаче идентификации интегральных уравнений кинетики. — Известия вузов. Ядерная энергетика, 2005, № 4, с. 25—34.
5. Казанский Ю.А., Матусевич Е.С. Экспериментальная физика реакторов. М.: Энергоатомиздат, 1994.
6. Хетрик Д. Динамика ядерных реакторов. М.: Атомиздат, 1975.

Поступила в Редакцию 16.10.09

УДК 621.039.542.532+543.26

РЕКОМЕНДАЦИИ ДЛЯ РАСЧЕТА ХАРАКТЕРИСТИК ТЕРМИЧЕСКОЙ ПОЛЗУЧЕСТИ СМЕШАННОГО УРАН-ПЛУТОНИЕВОГО ОКСИДНОГО ТОПЛИВА ПРИ АНАЛИЗЕ РАБОТОСПОСОБНОСТИ ТВЭЛОВ

Малыгин В.Б., Набойченко К.В., Шаповалов А.С. (НИЯУ МИФИ, г. Москва),
Бибилашвили Ю.К. (ОАО «ВНИИНМ», г. Москва)

Использование смешанного уран-плутониевого оксидного топлива в твэлах энергетических реакторов является необходимым условием внедрения замкнутого топливного цикла и расширения сырьевой базы ядерной энергетики. Пополнение базы знаний о свойствах смешанного топлива является необходимой и важной задачей обеспечения проектов твэлов энергетических реакторов. В работе [1] представлены рекомендации для расчета характеристик термической ползучести диоксида урана. Целью настоящей работы является получение соотношений для расчета характеристик термической ползучести смешанного уран-плутониевого оксидного топлива.

Анализ экспериментальных данных о термической ползучести смешанного топлива показал, что скорость ползучести линейно зависит от напряжения при $\sigma \leq 30\text{—}40$ МПа. При большом напряжении наблюдается степенная зависимость с показателем степени 4—5. При низком напряжении скорость ползучести обратно пропорциональна квадрату размера зерна. Следовательно, как и для диоксида урана [1], в широком интервале изменения напряжений скорость ползуче-

сти ξ с точностью до верификационных коэффициентов может быть представлена в виде

$$\xi = A\sigma D_V / G^2 + B\sigma^{4.5} D_V, \quad (1)$$

где A , B — коэффициенты, зависящие от плотности топлива и содержания плутония; D_V — коэффициент объемной диффузии; G — размер зерна; σ — напряжение.

В отличие от урана валентность плутония в соединениях меньше или равна четырем. По этой причине смешанное уран-плутониевое оксидное топливо имеет, как правило, достехиометрический состав. Для состава, близкого к стехиометрическому, характерно наличие вакансий в катионной подрешетке. По мере увеличения отклонения от стехиометрии возрастает концентрация межузельных атомов. Следовательно, коэффициент объемной диффузии D_V определяется суммой коэффициентов диффузии по вакансионному механизму и механизму вытеснения: $D_V = D_{VM} + D_L$. Коэффициенты объемной диффузии вакансий и межузельных атомов в катионной подрешетке равны произведению соответствующего

коэффициента самодиффузии на концентрацию дефектов:

$$\begin{aligned} D_{VM} &= B_V C_{VM} \exp(-\Delta H_{mVM}/kT) \exp(\Delta S_{mVM}/k); \\ D_{IM} &= B_I C_{IM} \exp(-\Delta H_{mIM}/kT) \exp(\Delta S_{mIM}/k), \end{aligned} \quad (2)$$

где C_{VM} , C_{IM} — концентрация вакансий и межузельных атомов в катионной подрешетке соответственно; B_V , B_I — расчетные константы; ΔH_{mVM} , ΔS_{mVM} , ΔH_{mIM} , ΔS_{mIM} — энергия и энтропия миграции вакансий и межузельных атомов.

В твердых растворах диоксида плутония и диоксида урана, как и в диоксиде урана, существуют следующие виды дефектов: пары Френкеля кислорода, пары Френкеля урана и дефекты Шоттки. Закон действующих масс, связывающий концентрацию разных дефектов, приводит к системе уравнений (4) [1], решение которой с учетом электронейтральности определяет концентрацию дефектов в смешанном топливе:

$$\begin{cases} C_{IM} = \left(K_{fM} \left[\sqrt{x^2 + 16K_{fO}} - x \right]^2 \right) / (16K_S) = \\ = K_{fM} R / 16K_S; \\ C_{VM} = (16K_S) / \left(\left[\sqrt{x^2 + 16K_{fO}} - x \right]^2 \right) = 16K_S / R. \end{cases} \quad (3)$$

Здесь

$$\begin{aligned} K_{fM} &= \exp(\Delta S_{fM}/k) \exp(-\Delta H_{fM}/kT); \\ K_S &= \exp(\Delta S_S/k) \exp(-\Delta H_S/kT); \\ K_{fO} &= \exp(\Delta S_{fO}/k) \exp(-\Delta H_{fO}/kT); \\ R &= \left(\sqrt{x^2 + 16K_{fO}} - x \right)^2, \end{aligned}$$

ΔH_{fO} , ΔS_{fO} , ΔH_{fM} , ΔS_{fM} , ΔH_S , ΔS_S — энергия и энтропия образования соответствующих типов дефектов. Комбинируя уравнения (2), (3), для коэффициента объемной диффузии катионов можно получить

$$\begin{aligned} D_V &= B_V \exp\left(-\frac{\Delta H_{mVM}}{kT}\right) \exp\left(\frac{\Delta S_{mVM}}{k}\right) \frac{16K_S}{R} + \\ &+ B_I \exp\left(-\frac{\Delta H_{mIM}}{kT}\right) \exp\left(\frac{\Delta S_{mIM}}{k}\right) \frac{RK_{fM}}{16K_S}. \end{aligned} \quad (4)$$

Подстановка в уравнение (1) коэффициента диффузии (4) приводит к соотношению для описания зависимости скорости стационарной ползучести от напряжения, температуры, размера зерна и отклонения от стехиометрии в виде

$$\begin{aligned} \xi &= \left[\frac{A(P, C)\sigma}{G^2} + B(P, C)\sigma^{4.5} \exp\left(-\frac{Q_1}{kT}\right) \right] \times \\ &\times \left[\frac{165}{R} \exp\left(-\frac{Q_2}{kT}\right) + \frac{R}{1 + 450x^2} \exp\left(-\frac{Q_3}{kT}\right) \right]; \quad (5) \\ R &= \left(\sqrt{x^2 + 82 \exp(-\Delta H_{fO}/kT)} - x \right)^2, \end{aligned}$$

где Q_1 , Q_2 , Q_3 — линейные комбинации энтальпии образования, миграции дефектов и их энергии взаимодействия с дислокацией; $A(P, C)$, $B(P, C)$ — коэффициенты, зависящие от пористости и содержания диоксида плутония. При выводе зависимости (5) учитывалась возможность образования скоплений дефектов с увеличением их концентрации, что характерно для больших отклонений от стехиометрии [2].

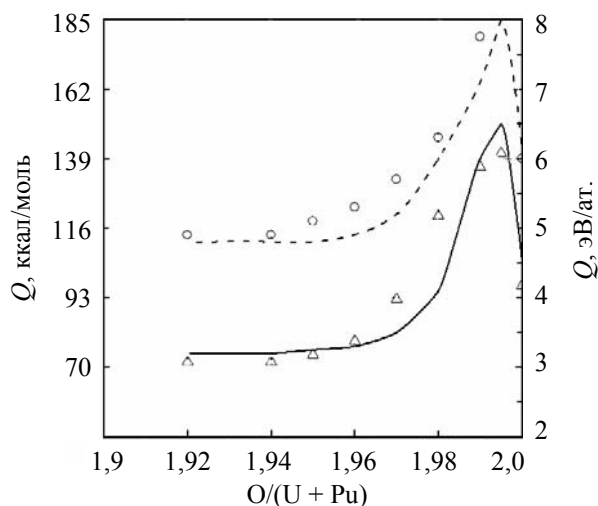
Значения энтропии и энтальпии образования и миграции дефектов взяты из работы [3]. Их подстановка в уравнение (5) и уточнение по экспериментальным зависимостям скорости ползучести от температуры [4—7] позволили получить следующие активационные параметры: $Q_1 = 1,6$ эВ, $Q_2 = 6,9$ эВ, $Q_3 = 3,8$ эВ, $\Delta H_{fO} = 2,5$ эВ. Предельные отклонения найденных активационных параметров при доверительной вероятности 0,95 составляют 7% средних значений.

Зависимость скорости ползучести от плотности и содержания плутония определяли по данным работ [7—9]. Для их учета в предлагаемых расчетных рекомендациях (5) получены следующие значения:

$$\begin{aligned} A(P, C) &= A \exp(19P + 3,6C); \\ B(P, C) &= B \exp(10,5P + 3,6C), \end{aligned} \quad (6)$$

где P — пористость; C — концентрация оксида плутония.

Одним из важнейших параметров ползучести является энергия активации, определяемая как производная $d \ln \xi / d(1/T)$. На рис. 1 приведено сравнение энергии активации, рассчитанной по соотношению (5) при разных отклонениях от стехиометрии, и экспериментальных данных [4] для высокого и низкого напряжения. Результаты расчета энергии активации согласуются с экспериментальными данными. Энергия активации является сложной функцией кислородного коэффициента и температуры. Однако в соотношениях Matpro [10] для описания ползучести

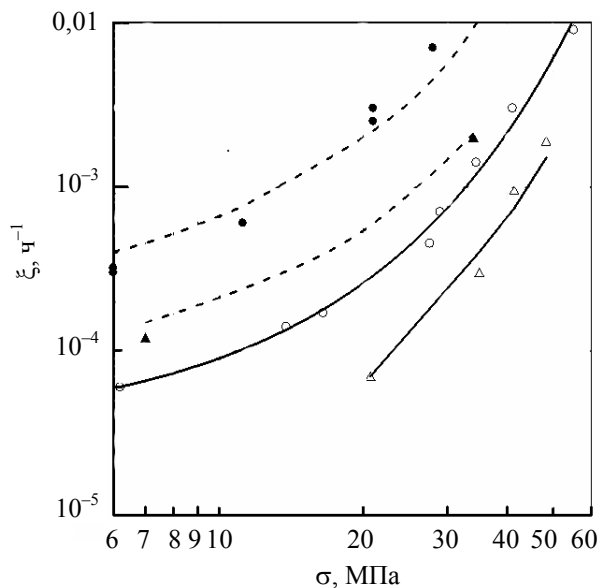


Р и с. 1. Зависимость энергии активации ползучести смешанного оксидного топлива от кислородного коэффициента: Δ , $\circ$ — эксперимент, низкое и высокое напряжение соответственно [4]; —, --- — расчет по соотношению (5) для низкой и высокой температуры соответственно

используется постоянная энергия активации для всех составов смешанного топлива.

На рис. 2 показано влияние отклонения кислородного коэффициента от стехиометрического на абсолютную скорость стационарной ползучести топлива [7]. Для составов 1,95 и 2 скорость ползучести различается примерно в 10 раз. Результаты расчета согласуются с наблюдаемыми данными.

Более подробные исследования показали, что скорость ползучести является сложной функцией состава [4, 5]. В области составов



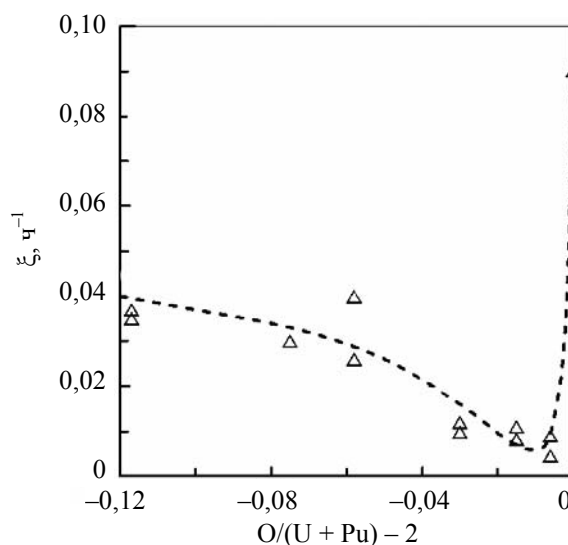
Р и с. 2. Зависимость скорости ползучести от напряжения для смешанного оксидного топлива при 1475 (Δ), 1550 °C ($\circ$), отклонении от стехиометрии $-0,05$, 1475 ($\blacktriangle$), 1550 °C ($\bullet$), стехиометрическом составе

1,99—1,995 она минимальна. Максимальные значения наблюдаются для состава 2,0. Расчетная зависимость скорости ползучести от состава показана на рис. 3 и согласуется с результатами экспериментов.

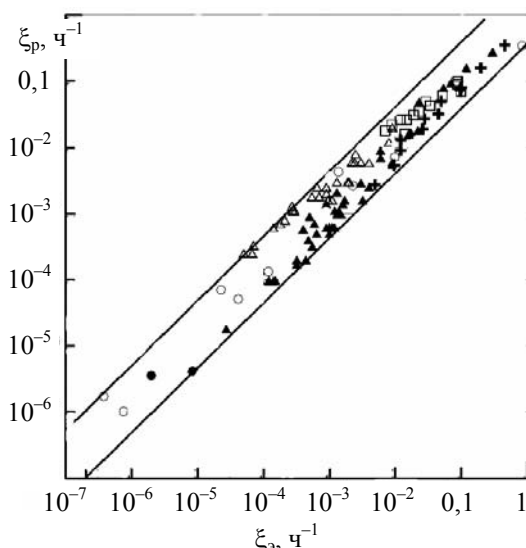
Расчетные рекомендации (5), полученные на основе диффузионно-дислокационной модели ползучести, верифицировали по экспериментальным данным работ [4—9, 11, 12]. Процедура верификации проводилась с использованием программного комплекса STATISTIKA 6.1. Средние коэффициенты в A и B в соотношении (6) равны $3,1 \cdot 10^{10}$ и $1,2 \cdot 10^7$ соответственно, если напряжение в уравнении (5) выражено в МПа, размер зерна — мкм, пористость и содержание оксида плутония — в относительных долях. При описании результатов, которые получены по разным методикам для образцов смешанного оксидного топлива, изготовленных по разной технологии, коэффициент A изменяется в пределах $(0,6—5,6) \cdot 10^{10}$, B — в пределах $(0,14—1,8) \cdot 10^7$.

Сопоставление результатов расчета по уравнениям (5), (6) и экспериментальных данных для скорости ползучести при сжатии в интервале температуры 1100—1675 °C и напряжения 0,7—120 МПа показано на рис. 4. Массовая доля оксида плутония в исследованных таблетках изменялось от 4,8 до 25%, кислородный коэффициент — от 1,91 до 2, размер зерна — от 3 до 25 мкм, пористость — от 3 до 10%.

В отличие от соотношений библиотеки Matpro разработанные расчетные рекомендации учитывают влияние кислородного коэффициен-



Р и с. 3. Зависимость скорости ползучести от нестехиометрии: Δ — эксперимент [5]; --- — расчет



Р и с. 4. Сопоставление расчетных и экспериментальных данных по предлагаемым рекомендациям (5): ▲ — [4, 5]; + — [6]; △ — [7]; ○ — [9]; ● — [11]; □ — [12]

та на скорость и энергию активации ползучести, что позволило более чем в 10 раз снизить погрешность описания экспериментальных данных.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Малыгин В.Б., Набойченко К.В., Шаповалов А.С., Бибилашвили Ю.К. Рекомендации для расчета характеристик термической ползучести диоксида урана при анализе работоспособности твэлов. — Атомная энергия, 2009, т. 107, вып. 6, с. 317—320.

2. Жирифалько Л. Статистическая физика твердого тела. М.: Мир, 1975. 384 с.
3. Лемехов С.Е. Диффузионно-трековая модель доспекаания диоксида урана в реакторных условиях: Препринт ИАЭ-4553/11, 1988.
4. Routbort J. Creep of mixed oxide fuel pellets at high stress. — J. Amer. Ceram. Soc., 1973, v. 56, № 6, p. 330—338.
5. Routbort J. Compressive creep of mixed oxide fuel pellets. — J. Nucl. Mater., 1972, v. 44, № 3, p. 247—253.
6. Javed N. Compressive creep of hypostoichiometric of UO_2 and $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ nuclear fuel pellets. — In: Proc. of Intern. Conf. IAEA Thermodynamics of Nuclear Materials, 1974, v. 1, p. 435—446.
7. Bohaboy P., Evans S. Compressive creep properties of $\text{UO}_2\text{—PuO}_2$ compounds. — In: Proc. of 4th Intern. Conf. Plutonium 1970 and other Actinides, v. 17, p. 478—487.
8. Houston M., Kruger O., Pardue W. Thermal creep of polycrystalline $\text{UO}_2\text{—PuO}_2$. — Ibid., p. 488—496.
9. Marleps J., Hough A. The creep of UO_2 and $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$. — Ibid., p. 497—509.
10. Matpro — a Library of Materials Properties for Light Water Reactor Accident Analysis. US Nuclear Regulatory Commission, Washington, 1995.
11. Perrin J. Effect of Irradiation on Creep of $\text{UO}_2\text{—PuO}_2$. — J. Nucl. Mater., 1972, v. 42, p. 101—104.
12. Caillot L., Ninon C., Basini V. Out of pile and in pile viscoplastic behavior of mixed oxide fuels. — In: Proc. of Intern. Seminar on Pellet — Clad Interaction in Water Reactor Fuels. Cadarache, France, 9—11 March 2004, p. 205—212.

Поступила в Редакцию 07.04.09

УДК 539.12.043

ИНТЕНСИВНОСТЬ ИЗЛУЧЕНИЯ И НАСЫЩЕНИЕ РАСШИРЕНИЯ КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ РЕШЕТКИ ОБЛУЧЕННОГО АЛМАЗА

Бачучин И.В., Красиков Е.А., Николаенко В.А. (РНЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

Одно из современных представлений об изменении свойств материалов при облучении в ядерном реакторе основывается на зонной теории образования дефектов. Зоны повышенной концентрации дефектов образуются в конце пробега первично-выбитых атомов. Их размер зависит от типа облучаемого материала. Например, в алмазе объем зоны составляет около $5 \cdot 10^{-21} \text{ см}^3$. Зоны смещения, возникающие в облучаемом материале, сначала не перекрываются, поэтому число зон, количество дефектов и изменение свойств, в частности, расширение крис-

таллической решетки алмаза увеличиваются на этом этапе пропорционально дозе облучения. При увеличении дозы облучения некоторые зоны смещения начинают перекрываться и число дефектов возрастает с меньшей скоростью, в связи с чем нарушается линейная зависимость расширения решетки от дозы. Наконец, при очень большом времени облучения, когда во всем объеме хотя бы один раз образовались зоны смещения, материал оказывается равномерно насыщенным дефектами. К этому времени возникающие новые зоны приводят только к замене