

УДК 621.039.548

НОВАЯ МОДЕЛЬ РАВНООСНОГО РОСТА ЗЕРЕН ДИОКСИДА УРАНА В УСЛОВИЯХ ОБЛУЧЕНИЯ

Курчатов С.Ю., Лиханский В.В., Хоружий О.В.

(ГНЦ РФ — Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований)

Одним из факторов, определяющих долговечность, надежность и безопасность использования ядерного топлива, является поведение продуктов деления. В настоящее время для моделирования процессов в выгоревшем топливе все чаще применяют численные модели, основанные на согласованном описании элементарных процессов и связей между ними. Это позволяет единым образом рассмотреть поведение системы в широком диапазоне исходных параметров и условий. Для успешного применения такого подхода необходимо достоверное описание элементарных процессов.

Среди элементарных процессов, существенно влияющих на выход продуктов деления из UO_2 , можно выделить два — диффузионный перенос и «сметание» продуктов деления при движении межзеренной границы. Если первый процесс исследован достаточно подробно и в целом достигнуто понимание механизмов и скорости диффузии продуктов деления (см., например, работы [1, 2]), то модели роста зерен, удовлетворительно согласующейся с экспериментальными данными, до сих пор нет. В частности, не выявлены причины существенной разницы между скоростью роста зерен при отжиге вне реактора и в условиях облучения [3].

Можно выделить два типа роста зерен: равноосный и рост столбчатых зерен [4]. В настоящей работе будет рассматриваться исключительно равноосный рост зерен.

Из возможных механизмов замедления роста наиболее подробно обсуждалась гипотеза, согласно которой движение границы тормозится присутствующими на ней газовыми пузырьками [5—7]. Упрощенным вариантом подобной модели можно считать попытку ввести на уровне корреляционной зависимости дополнительную тормозящую силу, пропорциональную выгоранию топлива [6]. Хотя зависимость, предложенная в работе [6], получила широкое распространение и используется во многих современных кодах, она имеет принципиальные недостатки. Во-первых, экспериментальные данные об уровне выгорания, достаточном для заметного замедления роста зерна, существенно различаются (см. обсуждение этого вопроса в работе [3]), что свидетельствует о неполноте данного типа корреляционной зависимости. Во-вторых, быстрый рост зерен наблюдался и в ходе вне реакторного отжига сильно выгоревшего топлива при наличии большого количества межзеренных пузырьков [7, 8]. Отсюда можно заключить, что тормозящее воздействие прежде всего обусловлено облучением.

Критически взглянуть на модели типа [6] заставляли экспериментальные результаты проекта Национальной лаборатории в Рисё (Дания) [9—11]. Этот проект посвящен всестороннему исследованию поведения сильно выгоревшего топлива при переходных режимах с повышением мощности и содержит набор представительных данных. Изучение роста зерен в условиях облучения и широком диапазоне температуры привело к выводу [11], что введение зависимости от выгорания приводит к качественному расхождению между данными наблюдений и предсказаниями на основании корреляции [6]. Без учета же фактора выгорания корреляция [6] дает существенно больший рост зерна по сравнению с наблюдаемым. Например, при исходном размере зерна 5,5 мкм и температуре 1500 °C наблюдаемый рост составляет примерно 4,7 мкм, предсказываемый — 20 мкм.

Для разрешения противоречия предложено [11] существенное изменение параметров модели — заметное понижение скорости роста и предельно достижимого размера зерна. Такой путь решения проблемы, хотя и снимает противоречие, нежелателен с практической точки зрения, так как параметры [6] были получены на основании широкого набора вне реакторных экспериментов и поэтому хорошо описывают рост зерна в отсутствие облучения.

Целью настоящей работы явилась разработка приемлемой физической модели, которая хорошо бы описывала экспериментальные данные о росте зерен как при отжиге вне реактора, так и в условиях облучения.

Качественный анализ. Физическая причина равноосного роста зерен состоит в невозможности сохранения термодинамически равновесного состояния границы между зернами различного размера — при динамическом равновесии граница будет искривлена, причем обращена выпуклостью в сторону зерна большего размера. Стремление к выравниванию границы приводит к росту большего зерна за счет меньшего. Согласно представлениям [12] описанный процесс формирует автомодельное распределение зерен по размеру и ведет к увеличению среднего размера зерна a . Последнее подразумевает, что скорость роста среднего размера зерна зависит только от его значения в данный момент времени, т.е.

$$V_a = \frac{da}{dt} = K(T) F_{\text{дв}}(a), \quad (1)$$

где V_a — характерная скорость перемещения межзеренной границы под действием движущей силы $F_{\text{дв}}$, зависящей от среднего размера зерна; K — подвижность, являющаяся функцией температуры T . Характерное значение движущей силы, действующей на единицу площади поверхности, приблизительно равно σ/a , где σ — коэффициент поверхностного натяжения.

При наличии какого-либо тормозящего воздействия в правую часть равенства (1) должна быть включена соответствующая сила торможения $F_{\text{торм}}$ $da/dt = K(T) (F_{\text{дв}}(a) - F_{\text{торм}})$.

Согласно [6] в отсутствие облучения равноосный рост зерен хорошо описывается соотношением следующего вида:

$$\frac{da}{dt} = K \left(\frac{1}{a} - \frac{1}{a_{\text{макс}}} \right), \quad (2)$$

где $K = 5,24 \cdot 10^7 \exp(-32100/T)$ мкм²/ч, тормозящая сила выражена через предельно достижимый размер зерна $a_{\text{макс}} = 2,23 \cdot 10^3 \exp(-7620/T)$ мкм.

Чтобы учесть замедление роста зерна, вызванное накапливающимися на границах продуктами деления, предложено [6] ввести дополнительную силу торможения, пропорциональную выгоранию. Используя для определения коэффициента пропорциональности данные экспериментов [13], построили модифицированную зависимость [6], учитывающую влияние выгорания на скорость роста зерна:

$$\frac{da}{dt} = K \left(\frac{1}{a} - \frac{1 + 0,002B}{a_{\text{макс}}} \right), \quad (3)$$

где B — выгорание топлива по урану, МВт·сут. Зависимость (3) хорошо описывает эксперименты [13], но приводит к качественным расхождениям предсказаний с результатами других экспериментов, например, [3 и 11].

Как отмечалось, экспериментальные данные могут быть согласованы, если допустить, что дополнительное тормозящее воздействие на рост зерен может вызывать непосредственное воздействие облучения. Представление о некоторых включениях, подобных газовым пузырькам и располагающихся на межзеренной границе, как о физической причине торможения роста зерен является наиболее естественным. Можно предположить, что замедление роста зерна вызвано включениями, формирующимися при прохождении треком осколка деления межзеренной границы, а затем быстро распадающимися. Например, таковыми могут являться области с промежуточной кристаллической структурой, возникающие при отжиге трека за счет встречной перекристаллизации на границе двух зерен. Вследствие неравновесности такие области будут

рассасываться за счет диффузионных процессов, но до этого они аналогично включениям второй фазы могут тормозить движение границы, причем тормозящая сила зависит от их радиуса R и поверхностной концентрации c [5]: $F_{\text{торм}} \cong \pi \sigma R c$.

Радиус включений можно оценить из размера трека, т.е. 100—500 нм. Поверхностную концентрацию определим, зная скорость их образования w (на единицу поверхности) и время жизни τ : $c \cong w\tau$. Последнее зависит от того, какой процесс отвечает за отжиг включения. Если это диффузия по границам зерен, то согласно данным [14]

$$\tau^{(\text{мз})} \cong C^{(\text{мз})} \frac{R^4 kT}{D^{(\text{мз})} W \sigma \Omega},$$

где $C^{(\text{мз})}$ — численный коэффициент; k — постоянная Больцмана; $D^{(\text{мз})}$ — коэффициент диффузии по границам зерен; $W \cong 100$ нм — толщина границы; Ω — атомарный объем (объем, приходящийся на один атом урана в кристаллической решетке диоксида урана).

Если же время жизни включений определяется объемной диффузией, то [14]

$$\tau^{(o)} \cong C^{(o)} \frac{R^3 kT}{D^{(o)} \sigma \Omega}.$$

Скорость рождения включений определяется числом осколков деления, пересекающих единицу поверхности в единицу времени: $w \cong 2 \bar{F} l_T$, где $\bar{F}$ — скорость делений в единице объема; l_T — длина трека.

Окончательно для тормозящей силы получим

$$F_{\text{торм}}^{(\text{мз})} \cong \frac{2\pi C^{(\text{мз})} R^5 l_{\text{торм}} kT}{D^{(\text{мз})} W \Omega} \bar{F} \quad (4)$$

в случае межзеренной диффузии и

$$F_{\text{торм}}^{(o)} \cong \frac{2\pi C^{(o)} R^4 l_T kT}{D^{(o)} \Omega} \bar{F} \quad (5)$$

в случае объемной диффузии.

В обоих случаях тормозящая сила, действующая на единицу площади границы, не зависит от размера зерна и способна приводить к остановке роста зерна по достижению им предельного размера $a_{\text{обл}} \cong \sigma / F_{\text{торм}}$.

Сильная зависимость от радиуса включений заставляет рассмотреть две гипотетические возможности: крупные включения, быстро распадающиеся за счет диффузии по границам зерен, или относительно долгоживущие мелкие включения, время жизни которых определяется объемной диффузией.

Оценим для обоих случаев предельный размер зерна. В первом случае, полагая $R \cong 1000$ нм, $D^{(\text{мз})} \cong 10^{-8}$ см²/с, $T \cong 2000$ К, $C^{(\text{мз})} \cong 1$ и используя значения [15] $l_T = 6$ мкм, $\Omega = 410$ нм, $\sigma = 1000$ эрг/см², получим $a_{\text{обл}}^{(\text{мз})} \cong 40$ мкм. Во втором случае, полагая $R_{\text{вк}} \cong 100$ нм, $D^{(o)} \cong 10^{-15}$ см²/с, $T \cong 2000$ К, $C^{(o)} \cong 0,2$, получим $a_{\text{обл}}^{(o)} \cong 8$ мкм. Обе оценки по порядку величины правильно описывают уровень дополнительного торможения, наблюдаемого в условиях облучения.

Естественно, что приведенные простые соображения носят только качественный и схематический характер. Тем не менее они дают естественное объяснение основных наблюдаемых закономерностей. Поэтому соотношения типа (4), (5) можно использовать для корреляции. Заметим, что в обоих случаях зависимость от температуры и

скорости деления может быть представлена в виде $F_{\text{торм}} = CTE \exp(E/T)$, где C — коэффициент пропорциональности; E — соответствующая энергия активации.

Исходя из этого, в рамках предлагаемой модели скорость роста зерна описывается выражением (2) с дополнительной тормозящей силой:

$$\frac{da}{dt} = K \left(\frac{1}{a} - \frac{1}{a_{\text{макс}}} - \frac{1}{a_{\text{обл}}} \right),$$

(6)

где

$$a_{\text{обл}} = \left[\frac{\dot{F}_0 T_0}{\dot{F} T} \right] A \exp(-E/T).$$

(7)

Здесь $\dot{F}_0 = 50$ МВт/т, $T_0 = 1400$ К — характерные значения интенсивности деления и температуры, выбранные для перехода к безразмерным величинам, параметры модели A и E должны быть найдены на основании экспериментов.

Анализ экспериментов. В таблице приведены основные характеристики экспериментов, используемых для выбора параметров модели. Данный набор экспериментов охватывает широкий диапазон температуры и мощности облучения, а также позволяет сопоставить наблюдаемый рост зерна для топлива с существенно различным выгоранием. С одной стороны, показательно, что единственный эксперимент, в котором не наблюдалось роста зерна, отличается от всех остальных только существенно более высокой интенсивностью облучения. Это находит естественное объяснение на основании представлений, изложенных в предыдущем разделе, и является важным аргументом в пользу предлагаемой модели. Хотя этот эксперимент нельзя использовать для количественного сравнения с предсказаниями модели, он устанавливает важное качественное ограничение на ее параметры. С другой, данные приведенных экспериментов по вне реакторному отжигу топлива, в том числе и топлива с 2%-ным выгоранием [8], согласуются с предсказаниями предложенной [6] корреляционной зависимости (2). Это говорит о слабом влиянии выгорания на рост зерна, а также с учетом обширного экспериментального материала, легшего в основу уравнения (2), о необходимости применять в отсутствие облучения параметры K и $a_{\text{макс}}$ [6].

Основные характеристики экспериментов, используемых для выбора параметров модели

Эксперимент	Интенсивность облучения, МВт/г	Температура, К	Выгорание топлива, %	Длительность эксперимента	Размер зерна, мкм	
					начальный	конечный (максимальный)
[11]	50	1300—2100	4	62 ч	6	12
[3]	21	2023	0—0,4*	2—6 мес	7	18
	0	1973	0	3 сут	7	40
[7]	0	2073	2	2000 с	5,6±0,3	7,14±3,65
[15]	200—1000	1250—2000	0—10*	1—10 мес	10	10**
[13]	14—17	1000—1900	0—1,5	830 сут	5	25
	20—21	1000—1900	0—0,7	320 сут	5	25
[6]	0	1273—2123	0	168 сут	3—15	10—50

*Эксперимент начинался с невыгоревшим топливом. Рост зерна происходил по мере выгорания топлива.

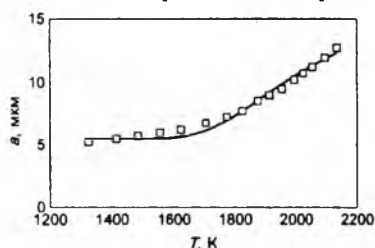
**Рост зерна не зарегистрирован.

Имеющиеся корреляционные зависимости роста зерна хорошо описывают экспериментальные данные, на которых они основаны, но приводят к существенным рас-

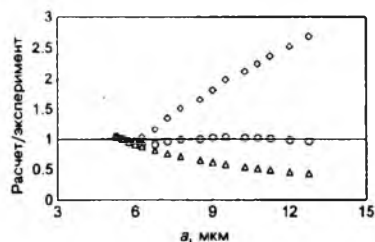
хождениям при анализе других экспериментов. Чтобы по возможности избежать подобного недостатка, в настоящей работе использована следующая схема выбора параметров в зависимости (7). Сначала определяли корреляционные параметры A и E только на основании данных о росте зерна при различной температуре [11]. Затем проводили проверку и предсказания модели сравнивали с данными других экспериментов без изменения ее параметров.

На рис. 1 приведено сравнение экспериментальной зависимости конечного размера зерна от температуры [11] и предсказаний модели с параметрами $A = 326,5$ мкм и $E = 5620$ К. Эти параметры были подобраны путем минимизации среднего квадрата отклонения рассчитанного размера зерна от экспериментально измеренного для массива данных проекта лаборатории в Рисё. На рис. 2 приведено отношение расчетного размера зерна к экспериментальному для предлагаемой модели, а также модели, принятой в работе [6], как с учетом (зависимость (3)), так и без учета выгорания (зависимость (2)).

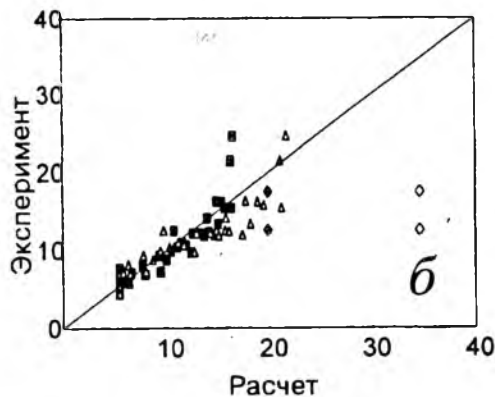
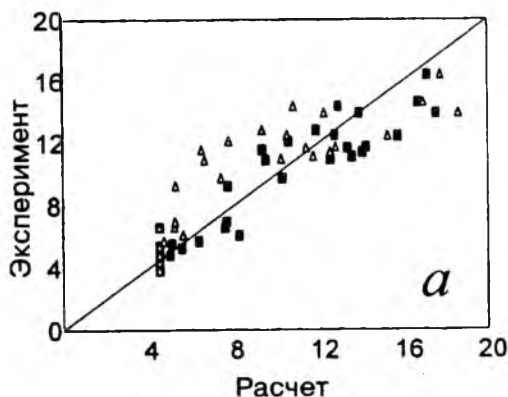
На рис. 3,а предсказания предлагаемой модели и корреляционной зависимости (3) сравниваются с результатами экспериментов [13] для двух разных интенсивностей облучения. Следует отметить, что предсказания предлагаемой модели имеют меньшее среднеквадратичное отклонение от эксперимента, несмотря на то, что именно эти результаты были использованы для обоснования уравнения (3). На рис. 3,б приведено также сравнение результатов расчетов с данными эксперимента [3], проводившегося при той же интенсивности облучения. Предсказания на основе зависимости (6) удовлетворительно согласуются с измерениями [3], в то время как при использовании уравнения (3) размер зерен значительно превышает наблюдаемый в эксперименте. При выбранных параметрах модели расчетный максимальный размер зерна, полученный применительно к условиям эксперимента [16], во всем диапазоне температуры оказывается меньше исходного. Это качественно согласуется с отсутствием роста зерен в этом эксперименте.



Р и с. 1. Зависимость наблюдаемого в эксперименте [11] конечного размера зерна ($\square$) и предсказаний модели (6) (—) от температуры



Р и с. 2. Отношение расчетного конечного размера зерна к наблюдаемому в условиях эксперимента [11]: $\circ$ — предлагаемая модель; $\diamond$ — корреляция (2) [6]; Δ — зависимость (3), учитывающая фактор выгорания



Р и с. 3. Сравнение размера зерна (мкм), рассчитываемого на основании предлагаемой модели ($\blacksquare$) и корреляции (3) (Δ), с данными экспериментов [13] для интенсивности облучения 14–17 МВт/т (а) и 20–21 МВт/т (б); сравнение предсказаний моделей с данными эксперимента [3]: $\blacklozenge$ — предлагаемая модель; $\diamond$ — корреляция (3)

Выводы. Экспериментальные данные свидетельствуют о замедлении роста равноосных зерен при облучении оксидного топлива. Это замедление роста зерна можно объяснить образованием короткоживущих дефектных структур на межзеренной границе под воздействием облучения.

Анализ широкого спектра экспериментальных данных показывает, что модель, основанная на такой гипотезе, правильно предсказывает рост равноосных зерен в широком диапазоне температуры, интенсивности облучения и выгорания топлива.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант № 96-02-18686.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Matzke HJ. Atomic transport properties in UO_2 and mixed oxide (U, Pu) O_2 . — J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2, 1987, v. 83, p. 1121—1142.
2. Turnbull J., Friskney C., Findlay J. e.a. The diffusion coefficient of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide. — J. Nucl. Mater., 1982, v. 107, p. 168—184.
3. Turnbull J. The effect of grain size on the swelling and release properties of UO_2 during irradiation. — Ibid., 1974, v. 50, p. 62—68.
4. Котельников Р.Б., Башлыков С.Н., Каштанов А.И., Меньшикова Т.С. Высокотемпературное ядерное топливо. М.: Атомиздат, 1978.
5. Speight M., Greenwood G. Grain boundary mobility and its effects in materials containing inert gases. — Phil. Mag., 1964, v. 9, p. 683—689.
6. Ainscough J., Oldfield B., Ware J. Isothermal grain growth kinetics in sintered UO_2 pellets. — J. Nucl. Mater., 1973/1974, v. 49, p. 117—128.
7. Rest J. The coupled kinetics of grain growth and fission product behaviour in nuclear fuel under degraded-core accident conditions. — Nucl. Technol., 1983, v. 61, p. 33.
8. Small G. Fission Gas Release from Uranium Dioxide in High-Temperature Transients. AERER 12956, Harwel Laboratory, May, 1988.
9. Walker C., Knappic P., Mogensen M. Concerning the development of grain face bubbles and fission gas release in UO_2 fuel. — J. Nucl. Mater., 1988, v. 160, p. 10—23.
10. Mogensen M., Bagger C., Walker C. An experimental study of the distribution of retained xenon in transient-test UO_2 fuel. — Ibid., 1993, v. 199, p. 85—101.
11. Bagger C., Mogensen M., Walker C. Temperature measurements in high burnup UO_2 nuclear fuel: implications for thermal conductivity, grain growth and gas release. — Ibid., 1994, v. 211, p. 11—29.
12. Atkinson H. Theories of normal grain growth in pure single phase systems. — Acta Metall., 1988, v. 36, p. 469—491.
13. Hargreaves R., Newbigging A. — UKAEA Internal Document, ссылка из [6].
14. Mullins W. Flattening of a nearly plane solid surface due to capillarity. — J. Appl. Phys., 1959, v. 30, p. 77—83.
15. Olander D. Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements. TID-26711-P1, U.S. Technical Information Center, U.S. ERDA, Springfield, VA, 320, 1976.
16. Zimmermann H. Investigation on swelling and fission gas behaviour in uranium dioxide. — J. Nucl. Mater., 1978, v. 75, p. 154—161.

Поступила в Редакцию 5.11.97

УДК 621.039.73

ВИДЫ И КРИТЕРИИ ИЗЪЯТИЯ ИЗ-ПОД РЕГУЛИРУЮЩЕГО КОНТРОЛЯ ТВЕРДЫХ ОТХОДОВ И МАТЕРИАЛОВ НИЗКОГО УРОВНЯ АКТИВНОСТИ

Суханов Л.П. (ГНЦ РФ — ВНИИНМ им. А.А. Бочвара)

Эксплуатация и в особенности снятие с эксплуатации атомных объектов сопряжены с образованием твердых радиоактивных отходов и материалов, в том числе с очень низкой удельной активностью. Объемы таких отходов велики, а радиационное воздействие на человека незначительно. В этой связи особую актуальность приобретает