

**МОДЕЛЬ РАДИАЦИОННОГО УПЛОТНЕНИЯ
ОКСИДНОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА
A MODEL OF RADIATION-INDUCED DENSIFICATION
OF OXIDE NUCLEAR FUEL**

Ю.Н. Девятко¹, В.В. Новиков², О.В. Хомяков¹, Д.А. Чулкин²
Yu.N. Devyatko¹, V.V. Novikov², O.V. Khomyakov¹, D.A. Chulkin²

¹ НИЯУ МИФИ, Каширское шоссе, 31, г. Москва, РФ,
e-mail: homaykov_o_v@mail.ru;

²ОАО ВНИИНМ, ул. Рогова, 5а, г. Москва, РФ

A process of radiation-induced densification of UO₂ is analyzed. It is shown that in vicinity of fission fragment tracks the local melting area and zone of plastic yield are formed. It is developed a model of closing of pore in the plastic medium due to influence of stress created in fission fragment tracks.

В течение первых 10^2 - 10^3 часов облучения оксидного ядерного топлива в активной зоне реактора на тепловых нейтронах наблюдается сокращение геометрических размеров топливной таблетки и длины топливного столба в целом, сопровождающееся уплотнением топлива [1]. По техническим условиям исходная плотность штатных таблеток уранового топлива, составляет ρ_0 -95% от теоретической плотности (%ТП). Оставшиеся же 5% от объёма топливной таблетки приходится на поры, которые остаются в таблетке после её спекания, либо специально создаются в ней путём введения порообразователя в порошок диоксида урана до стадии его прессования. Максимум уплотнения $\Delta\rho/\rho_0$ достигается при плотности делений в таблетке $\sim 10^{19}$ - 10^{20} дел/см³, что соответствует энерговыделению 2-4 МВт·сут/кгU. Значение величины $\Delta\rho/\rho_0$ меняется в пределах 0.1-1.5 %ТП и зависит от структуры топливной таблетки, наличия в ней легирующих добавок и условий облучения. При степени выгорания превышающей 4 МВт·сут/кгU начинается радиационное распухания топлива, которое подавляет процесс его дальнейшего уплотнения.

Явление радиационного уплотнения известно уже давно. В экспериментальных работах [1-4], проведённых в 70-80-е годы, изучены основные факторы, оказывающие влияние на величину радиационного уплотнения. Так, согласно выводам [1], наиболее интенсивному уплотнению подвержено топливо, обладающее низкой начальной плотностью, основная доля пор в котором принадлежит субмикронной области размеров, а также топливо, облучавшееся при более высоких температурах. Причём

фактор, связанный с видом функции распределения пор по размерам, является определяющим.

Согласно распространенной модели радиационного доспекания [5-7], причиной уплотнения является растворение пор в облучаемой таблетке, происходящее в результате рассеяния на них высокоэнергетических осколков деления урана (энергия осколков ~ 100 МэВ, относительная атомная масса $A \sim 10^3$). В [5-7] принималось, что при пересечении высокоэнергетическим осколком поры часть её объёма трансформируется в систему изолированных вакансий. Далее вакансии диффундируют на стоки дефектов – границы зерен. В результате объём таблетки сокращается. При выводе основных соотношений в работах [5-7] был допущен ряд грубых математических ошибок, а механизм растворения пор постулирован. Предсказательной способности модель [5-7] не имеет, а выдвинутые в ней гипотезы не обоснованы.

Цель настоящей работы – построение модели радиационного уплотнения оксидного ядерного топлива.

При прохождении высокоэнергетического осколка деления урана через вещество основная доля его энергии (98-99%) расходуется на ионизацию атомов среды вдоль траектории его перемещения (трека). Так, для иона Xe^+ при начальной энергии $E_0 = 100$ МэВ величина электронных потерь энергии $-(dE/dx)_e = 25 \cdot 10^2$ эВ/Å на 2 порядка превышает упругие потери энергии осколка $-(dE/dx)_e = 24.5$ эВ/Å [8], а его средняя длина пробега в диоксиде урана составляет $L_{\text{Xe}} = 5.4$ мкм. Следовательно, число возбуждённых электронов на единицу длины трека равно $N_e/L_{\text{Xe}} \sim |dE/dx|_e / I_{\text{UO}_2} = 4.6 \cdot 10^{10}$ шт/см ($I_{\text{UO}_2} = 5.5$ эВ – потенциал ионизации UO_2). Максимальная энергия, приобретаемая электроном в процессе столкновения с ионом ксенона – $\epsilon_e \sim (4m_e/M_{\text{Xe}})E_0 \sim 4$ кэВ, а длина его свободного пробега – $L_e \sim 10$ нм. Соответственно, средняя концентрация электронов «первого поколения» в объёме трека близка к постоянной Лошмидта $N_e/L_{\text{Xe}} \pi (L_e)^2 \sim 2.5 \cdot 10^{19}$ см $^{-3}$. Электрон с энергией $\epsilon \sim 4$ кэВ, в свою очередь, способен перевести в возбуждённое состояние порядка 80 электронов «второго поколения». Характерная длина пробега электронов «второго поколения» определяется уже процессами рассеяния на оптических фонах и составляет величину порядка нескольких постоянных решётки. Поэтому в дальнейшем система электронов «второго поколения» теряет свою энергию за счёт электрон-фононного взаимодействия. Таким образом, полная концентрация электронов в зоне проводимости UO_2 в области трека достигает $\sim 80 N_e/L_{\text{Xe}} \pi (L_e)^2 \sim 2 \cdot 10^{21}$ см $^{-3}$. В равновесном состоянии такой концентрации электронов в UO_2 , формально,

соответствовала бы температура $\sim 14000 \text{ K} \gg T_m$ ($T_m \sim 3120 \text{ K}$ температура плавления UO_2). Температура, на которую может нагреться ионная подсистема за счёт энергии, непосредственно переданной ей осколком деления, не превышает 100 K : $\Delta T \sim |dE/dx|_e / \lambda \tau$ ($\tau \sim 2.5 \cdot 10^{-10} \text{ сек}$ – характерное время теплопроводности, $\lambda = 2 \text{ Вт/м}\cdot\text{К}$ – теплопроводность UO_2). Энергия возбуждённых электронов также расходуется на нагрев решётки в объёме трека. Максимальная величина нагрева $\Delta T \sim E_0 / C_v L_{Xe} \pi (L_e)^2 \sim 3100 \text{ K} \sim T_m$, где $C_v = 3.04 \text{ Дж/см}^3 \cdot \text{К}$ – удельная теплоёмкости при постоянном объёме UO_2 . Итог – в окрестности трека вещество плавится.

Из-за несоответствия удельных объёмов расплава и твёрдой фазы ($\delta V/V = 5.9\%$) на границе трека возникают сжимающие термические напряжения $\sigma = K(\delta V/V) \sim 1.6 \text{ ГПа}$ (K – модуль всестороннего сжатия расплава UO_2), превышающие предел текучести диоксида урана σ_T . Вокруг трека формируется зона пластических деформаций, радиус которой r_p оценивается из решения задачи о расчёте упруго-пластичного состояния толстостенной трубы: $r_p = L_e \cdot \exp(\sigma / 2\sigma_T - 1/2) \sim 1 \text{ мкм}$. Время, необходимое для того, чтобы весь объём таблетки был покрыт непересекающимися треками, составляет $\Delta t = 1 / (\pi (r_p)^2 L_{Xe} F) \sim 3 \text{ сек}$ при частоте делений в единице объёма $F = 10^{13} \text{ дел/см}^3 \cdot \text{с}$. Это время существенно меньше времени радиационного уплотнения. Таким образом, по отношению к длительности развития процесса радиационного уплотнения можно считать, что вещество в окрестности пор практически постоянно находится в пластичном состоянии. Поры, расположенные в вязкой (пластичной) среде, зарастают под действием сил сжатия в окрестностях треков осколков деления.

Процесс зарастания изолированной поры с начальным объёмом V и площадью поверхности Σ в вязкой среде (η – коэффициент вязкости) в приближении установившегося потока вещества к поре описывается системой уравнений:

$$\begin{cases} \sigma \frac{dV}{dt} + \gamma \frac{d\Sigma}{dt} = - \int dV' \frac{\sigma_{ik}^2}{2\eta}, \\ \Delta \vec{v} = 0, \\ \oint_{\Sigma} d\vec{\Sigma} \vec{v} = - \frac{dV}{dt}. \end{cases}$$

где γ – коэффициент поверхностного натяжения, V' – объём вещества за вычетом пор, \vec{v} – скорость потока вещества по направлению к поре, σ_{ik} – тензор вязких напряжений.

Из решения этой системы уравнений следует зависимость радиуса поры от времени $R(R_0; t)$ при заданном её начальном радиусе R_0 .

Если известна функция распределения пор по размерам исходной необлучённой таблетки $f_0(R_0)$, то величина уплотнения рассчитывается по формуле:

$$\frac{\Delta\rho(t)}{\rho_0} = -\frac{\Delta V}{V} = \int_0^\infty dR_0 (R_0^3 - R^3(R_0; t)) f_0(R_0) / \int_0^\infty dR_0 R_0^3 f_0(R_0)$$

На Рис. 1а сравнивается расчётное уплотнение с экспериментальными данными по уплотнению 2-х исследовательских типов топливных таблеток, характеризующихся различной функцией распределения пор по размерам (см. Рис. 1б) [9]. Видно, что модельные кривые на Рис. 1а описывают экспериментальные точки.

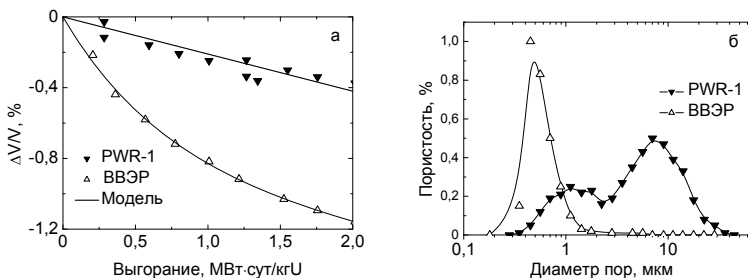


Рис. 1. Зависимость от степени выгорания радиационного уплотнения образцов оксидного ядерного топлива (а) с различной функцией распределения пор по размерам (б).

Таким образом, радиационное уплотнение уранового оксидного ядерного топлива - следствие зарастания пор в вязком веществе под действием напряжений, возникающих в UO_2 в треках высокоэнергетических осколков деления урана.

1. M.D.Freshley, D.W.Brite, JNM 62 (1976) 138.
2. G.J.Small, JNM 148 (1987) 302.
3. G.Mayer, H.Assmann, W.Dörr, JNM 153 (1988) 213.
4. H.Assmann, W.Doerr, M.Peehs, J. Am. Ceram. Soc. 67(9) (1984) 631.
5. H.Assmann, H.Stehle, Nucl. Eng. and Des. 48 (1978) 49.
6. H.Stehle, H.Assmann, JNM 52 (1974) 303.
7. H.Stehle, H.Assmann, JNM 61 (1976) 326.
8. J.F. Ziegler. <http://www.srim.org>.
9. Ю.Б.Волков, В.Висенак, В.В.Яковлев и др, Атомная энергия 113(3) (2012) 140.
10. Ю.Б.Волков, Х.Йенсен, Е.П.Рязанцев, А.К.Панюшкин, А.В.Иванов, О.В.Крюков, П.И.Лавренюк, Ю.В.Пименов. Атомная энергия 114(6) (2013) 325.