

**ХЛУНОВ АЛЕКСАНДР ВИТАЛЬЕВИЧ**

**МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ И ЯВЛЕНИЙ  
В ОКСИДНОМ ЯДЕРНОМ ТОПЛИВЕ  
ПРИ ВЫСОКОМ ВЫГОРАНИИ**

01.04.07 – «Физика конденсированного состояния»

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени кандидата  
физико-математических наук

Автор

Москва – 2009

Работа выполнена в Национальном исследовательском ядерном университете  
«МИФИ»

НАУЧНЫЙ РУКОВОДИТЕЛЬ: кандидат технических наук,  
старший научный сотрудник  
зав. НИС В.Г. Баранов

ОФИЦИАЛЬНЫЕ ОПОНЕНТЫ: доктор физико-математических наук,  
профессор  
Бушуев Анатолий Васильевич  
НИЯУ МИФИ, г. Москва

доктор физико-математических наук,  
Заболотный Владимир Тихонович  
ИМЕТ РАН им. А.А. Байкова, г. Москва

ВЕДУЩАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ: НПО «Луч», г. Подольск

Защита состоится « 28 » октября 2009 г. в 15 час 00 мин.  
на заседании диссертационного совета Д 212.130.04 НИЯУ МИФИ  
по адресу: 115409, Москва, Каширское шоссе, 31.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ

Автореферат разослан «\_\_\_\_\_» сентября 2009 г.

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в одном  
экземпляре, заверенном печатью организации, по адресу НИЯУ МИФИ.

Ученый секретарь диссертационного совета  
НИЯУ МИФИ, д.ф.-м.н., профессор

И.И. Чернов

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

**Актуальность проблемы.** В мировой атомной энергетике работают реакторы различного типа на тепловых и быстрых нейтронах. Одним из путей реализации существующей в ядерной энергетике тенденции к снижению стоимости топливного цикла является увеличение глубины выгорания топлива. При этом снижается стоимость топливной составляющей и расходы на переработку, транспортировку и хранение отработавшего ядерного топлива. Кроме того, повышение длительности использования тепловыделяющих сборок в ядерных реакторах снижает эксплуатационные расходы и повышает коэффициент использования мощности АЭС.

Увеличение глубины выгорания целесообразно как с точки зрения позитивного решения экономических вопросов, так и по причине вовлечения в большую энергетику высокообогащенного урана и плутония из запасов, поскольку переход на глубокие выгорания и длительные кампании топлива невозможен без увеличения степени обогащения уранового топлива или добавления к нему плутония.

Наибольший эффект можно получить при использовании плутония в реакторах на быстрых нейтронах, но поскольку их количество в мире ограничено, а строительство новых реакторов только планируется, то наиболее распространенным решением использования плутония (как полиизотопного, так и оружейного) является разбавление его обедненным или природным ураном до 5 % для получения смешанного уран-плутониевого топлива (МОХ – топлива).

При глубоком выгорании оксидного ядерного топлива происходят существенные изменения структурно-фазового состояния (СФС), химического состава и плотности топливного сердечника твэла. По мере накопления продуктов деления (ПД) изменяется кислородный потенциал и выделяются новые локализованные фазы в объеме диоксида, увеличивается толщина наиболее поврежденного поверхностного слоя топливной таблетки, известного как *rim*-зона или *rim*-слой. В *rim*-зоне в процессе облучения происходит диспергирование исходных зерен с типичным размером ~15 мкм на субзерна с размером 0,2–0,3 мкм и низкой плотностью дислокаций. В результате этого при увеличении выгорания и накоплении продуктов деления топлива в поверхностном слое таблеток формируется мелкозернистая *rim*-структура с повышенной газовой пористостью достаточно крупного (микрометры) размера. Например, при среднем по топливу выгорании 105 ГВт·сут/т U локальное выгорание в поверхностном слое таблетки достигает 300 ГВт·сут/т U, и при этом образуется структура так называемого ультра высокого выгорания. В этой зоне размер газовых пор достигает размера 15 мкм вследствие коалесценции по Оствальду или за счет миграции пузырьков, что приводит к увеличению локальной пористости до величины ~ 22 %.

В результате изменения СФС происходит изменение физико-химических, теплофизических и физико-механических свойств топлива, увеличивается степень физико-химического и механического взаимодействия в системе «топливо–оболочка–теплоноситель», изменяется работоспособность твэлов как в штатном режиме, так и в процессе аварийных ситуаций, могут существенно измениться условия переработки и хранения отработавшего ядерного топлива. В этой связи весьма важным представляется выявление степени и характера изменений СФС и химического состава ядерного топлива в результате трансмутации и накопления продуктов деления, масштаба влияния изменений на свойства топлива, и прежде всего на уменьшение теплопроводности, предела прочности, увеличение ползучести, на возможность появления легкоплавких фаз.

Существенный научный и практический интерес представляют теплофизические процессы как в топливной композиции, так и в твэле в целом.

Применительно к оксидному ядерному топливу заметное снижение теплопроводности происходит при облучении в реакторе за счет накопления растворимых продуктов деления, а так же за счет образования радиационных дефектов в результате воздействия осколков деления. Это уменьшение теплопроводности особенно сильно проявляется при температуре ниже 1000 К.

Наиболее сильные изменения могут происходить в *rim*-зоне. Знание особенностей и закономерностей изменения состояния и свойств топливной композиции весьма важно при прогнозировании поведения топлива, рассчитанного на глубокие выгорания, при уточнении конструкции ТВЭЛов и выборе режимов эксплуатации реактора.

Применительно к ТВЭЛу, как источнику ядерной энергии, теплопроводность материалов и теплопередача в радиальном направлении ТВЭЛа являются важными свойствами, но трудно определяемыми в эксперименте, и поэтому интерес представляет теоретический анализ и моделирование теплопередачи с учетом *rim*-слоя, появления и роста окисленного слоя на циркониевой оболочке, снижения величины зазора между топливной композицией и оболочкой ТВЭЛа.

Работоспособность топлива существенно зависит от накопления газов (водорода, кислорода, оксидов углерода) в процессе технологических операций получения компактных таблеток оксидов, причем это накопление существенно зависит от состава и стехиометрии топливной композиции. Для выбора оптимального состава топлива необходимо знать основные закономерности накопления технологических газов.

Имеющиеся сведения о состоянии и свойствах оксидного ядерного топлива относятся в основном к таблеткам из диоксида урана и лишь в очень незначительной степени к таблеткам на основе  $UO_2-CeO_2$  и  $UO_2-PuO_2$ . Кроме того, явно недостаточно работ по оксидному топливу, содержащему имитаторы продуктов деления, добавки выгорающих поглотителей нейтронов в виде  $Gd_2O_3$  или  $Er_2O_3$ , а также пластифицирующие добавки типа  $Nb_2O_5$ ,  $Cr_2O_3$ ,  $TiO_2$ ,  $Fe_2O_3$  и  $Al_6Si_2O_{13}$ .

В этой связи изучение процессов образования и роста *rim*-зоны, радиального распределения выгорания и температурного поля в топливном сердечнике ТВЭЛа, влияния добавок оксидов Nb, Al, Si, Fe, Gd, Ce на величину стехиометрии  $UO_2$  и выделение газообразных продуктов деления является актуальным направлением исследований.

**Цель работы.** Целью работы явилась разработка физических принципов увеличения работоспособности ТВЭЛов при глубоких выгораниях ядерного топлива путем замедления формирования *rim*-структуры за счет использования комплекса легирующих компонентов, изменения радиального распределения температуры и теплопроводности топливной композиции.

**Научная новизна и практическая значимость работы.**

Впервые на основе анализа расчета радиального распределения выгорания в оксидном ядерном топливе предложен способ увеличения в 1,5–2 раза порогового значения выгорания до образования *rim*-зоны путем использования комбинированного топливного сердечника, в котором центральная часть выполнена из топлива с большим количеством делящихся изотопов, например из обогащенного урана, а тонкий периферийный слой – из природного или обедненного урана, причем дополнительно периферийный слой может содержать выгорающий поглотитель нейтронов  $Gd_2O_3$ .

Впервые на основе результатов расчета энерговыделения в комбинированном топливном сердечнике обоснована возможность экономии высокообогащенного ядерного топлива.

Установлено влияние нестехиометрии, пористости, пластифицирующих добавок, выгорающего поглотителя нейтронов и имитатора плутония на газовыделение из модифицированного оксидного ядерного топлива (МОЯТ) и предложен метод снижения выхода CO и  $CO_2$  из МОЯТ при глубоком выгорании.

Разработаны способ и устройство для определения коэффициента химической диффузии кислорода в  $UO_2$ , с помощью которого были получены значения  $\tilde{D}$  в интервале 1000–1600 К при разных отклонениях от стехиометрии. Значения  $\tilde{D}$  использованы для расчета кинетики выделения CO и  $CO_2$  из таблеток  $UO_{2+x}$ .

Разработаны методы расчета радиального распределения температуры в ТВЭЛе ВВЭР при высоких выгораниях с учетом *rim*-зоны, оксидного слоя на циркониевой оболочке и радиального градиента нестехиометрии в топливных таблетках на основе  $UO_2$  с определением величины градиента кислородного потенциала, при котором происходит интенсивное выделение (более 100 мм<sup>3</sup>/г) растворенного в матрице углерода в виде газов CO и  $CO_2$ .

Показана необходимость снижения линейной мощности твэла по мере роста выгорания на основе результатов разработанного метода аналитического расчета температурных полей твэла при линейной мощности 100–500 Вт/см и среднем выгорании до 120 ГВт·сут/т U с учетом изменяющихся в процессе выгорания параметров: микроструктуры, ширины *rim*-зоны, толщины оксидного слоя на оболочке твэла, газового состава, давления и величины зазора топливо–оболочка.

Предложен метод учета тепловых потерь при измерении теплопроводности таблеток UO<sub>2</sub> методом лазерной вспышки.

Практическая значимость работы заключается в том, что результаты исследования позволяют:

- увеличить в 1,5–2 раза пороговое значение выгорания с образованием *rim*-зоны путем использования комбинированного топливного сердечника, в котором центральная часть выполнена из обогащенного урана, а тонкий периферийный слой – из природного или обедненного урана;
- экономить высокообогащенное ядерное топливо;
- учитывать тепловые потери при измерении теплофизических ( $\lambda$ ,  $a$ ,  $C_p$ ) характеристик таблеток оксидного ядерного топлива методом лазерной вспышки;
- определять влияние нестехиометрии, пористости, добавок оксидов Nb, Al, Si, Fe, Gd и Pu на газовыделение из модифицированного оксидного ядерного топлива;
- получать радиальное распределение температуры в твэле ВВЭР при высоких выгораниях с учетом влияния *rim*-зоны и оксидного слоя на циркониевой оболочке;
- определять величину коэффициента химической диффузии кислорода в UO<sub>2</sub> в интервале 1000–1600 К при разных отклонениях от стехиометрии;
- рассчитать количество выделившегося под оболочку твэла растворенного в UO<sub>2</sub> углерода в виде CO и CO<sub>2</sub> при достижении в процессе выгорания радиального градиента нестехиометрии выше 0,01 ед. (O/M)/мм.

#### **Основные положения, выносимые на защиту.**

Разработанная методика расчета радиального распределения выгорания в оксидном топливном сердечнике.

Предложенный способ увеличения в 1,5–2 раза порогового значения выгорания путем использования комбинированного топливного сердечника с центральной частью из обогащенного урана и тонкой периферийной зоной из обедненного или природного урана.

Результаты энерговыделения в периферийном слое комбинированного топливного сердечника.

Предложенный комбинированный топливный сердечник с выгорающим поглотителем нейтронов, например, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Способ и устройство для определения коэффициента химической диффузии кислорода в UO<sub>2</sub>.

Методика учета тепловых потерь при измерении теплопроводности UO<sub>2</sub> импульсным методом.

Результаты измерений удельного газовыделения из таблеток легированного диоксида урана при различных значениях радиального градиента нестехиометрии, пористости, количества добавок.

Метод расчета температурных полей твэла с оксидным ядерным топливом в зависимости от линейной мощности, выгорания, ширины *rim*-зоны, толщины оксидного слоя на оболочке, газового состава, давления и величины зазора топливо–оболочка.

**Объем и структура работы.** Диссертация состоит из введения, четырех глав, выводов и библиографии. Работа изложена на 118 страницах, содержит 36 рисунков, 23 таблицы и список цитируемой литературы из 119 наименований.

**Апробация работы.** Основные положения работы докладывались и обсуждались на следующих научных семинарах, совещаниях и конференциях: Отраслевой научный семинар «Физика радиационных повреждений материалов атомной техники» (ГНЦ РФ ФЭИ, г. Обнинск, апрель 2009 г.); IX Российская конференция по реакторному материаловедению (ОАО

ГНЦ НИИАР, г. Димитровград, сентябрь 2009 г.); Международная конференция «Математическое моделирование и вычислительная физика» (г. Дубна, июль 2009 г.); Отраслевой научный семинар «Физическое моделирование изменения свойств реакторных материалов в номинальных и аварийных режимах» (ОАО ГНЦ НИИАР, г. Димитровград, май 2009 г.).

**Публикации.** По теме диссертации опубликованы 12 работ, включая 6 статей в реферируемых научных журналах, получено 2 авторских свидетельства на изобретения.

## ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Во введении** обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы цель работы и решаемые задачи, указаны научная новизна и практическая ценность, изложены основные положения, выносимые на защиту.

**Глава 1** посвящена моделированию ядерно-физических процессов, вызывающих формирование *rim*-зоны в топливной таблетке на основе  $UO_2$ . Моделирование процессов образования *rim*-слоя позволяет предложить пути для уменьшения его отрицательного влияния на характеристики твэла.

В расчетах использовалась трехзонная цилиндрическая модель ячейки реактора ВВЭР-1000. Радиус топливной таблетки из диоксида урана плотностью  $10,27 \text{ г/см}^3$ , равный внутреннему радиусу оболочки, был принят 3,86 мм. Толщина циркониевой оболочки 0,69 мм. Внешний радиус ячейки соответствовал шагу треугольной решетки равной 12,5 мм. Рассматривалось рабочее состояние ячейки с температурой воды 573 К и плотностью  $0,71 \text{ г/см}^3$ . Обогащение топлива по  $^{235}U$  для возможности достижения глубокого выгорания было выбрано равным 5,5 %.

На рис. 1 представлены графики распределения по радиусу трехзонной ячейки групповых потоков различных энергетических интервалов, полученные по программе SCALE. Все представленные потоки нормированы на 1 в центре топливной ячейки ( $r = 0$ ). Как видно из рис. 1, наибольшее изменение по радиусу имеет поток резонансных нейтронов. За счет такого поведения потока резонансных нейтронов скорость накопления плутония во внешних слоях топливной таблетки выше, чем в центральных слоях. В периферийном слое толщиной 0,4 мм скорость захвата изотопом  $^{238}U$  на 34 % больше, чем в остальной области за счет увеличения резонансного поглощения. При этом, чем меньше толщина периферийного слоя, тем больше различие.

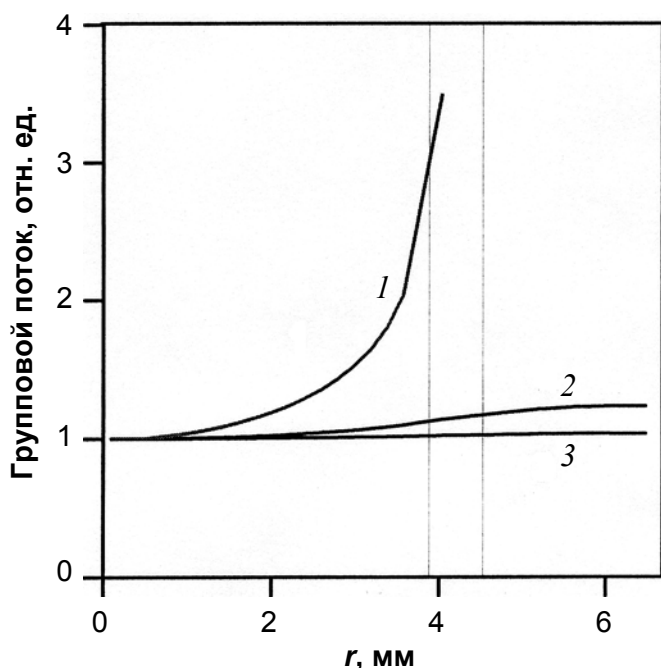


Рис. 1. Распределение групповых потоков по трехзонной ячейке: 1 – нейтроны (6,5–6,75 эВ) 1-ый резонанс  $^{238}U$ ; 2 – нейтроны (< 0,4 эВ) тепловые нейтроны; 3 – нейтроны (0,4 эВ – 0,5 МэВ) промежуточные нейтроны

Изменение потока тепловых нейтронов приводит к увеличению энерговыделения на периферии топливной таблетки. В слое 0,4 мм скорость деления  $^{235}U$  на 8 % больше, чем в остальной области.

Изменение изотопного состава ядерного топлива в некоторой зоне можно характеризовать коэффициентом воспроизводства ядерного топлива (КВ). Для свежего топлива КВ можно оценить из следующей формулы:

$$KB = \frac{\sigma_c^8 \cdot \rho^8}{\sigma_a^5 \cdot \rho^5}, \quad (1)$$

где  $\sigma_c^8$  и  $\sigma_a^5$  – сечения захвата и поглощения, а  $\rho^8$  и  $\rho^5$  – плотности соответственно  $^{238}U$  и  $^{235}U$ .

Расчеты КВ были проведены по программе MCNP, в которой используется непрерывная зависимость сечений от энергии и отсутствует проблема блокировки резонансных сечений в зависимости от расположения топливной зоны по радиусу ячейки. Аналогичные расчеты по программе SCALE могут приводить к некорректным результатам по указанной выше причине. Результаты расчетов КВ для свежего уранового топлива для различных зон топливной таблетки представлены на рис. 2 ( $r_0$  – радиус топливной таблетки).

В табл. 1 приведены результаты расчета элементного состава при глубине выгорания 80 ГВт·сут/т U в среднем по таблетке. Начальное топливо - диоксид урана с содержанием 5,5 % изотопа  $^{235}\text{U}$ .

Как видно из табл. 1, результаты расчетов по программам SCALE и UNK хорошо согласуются между собой. Моделирование элементного состава в *rim*-слое проводилось по программе UNK. Топливная таблетка разбивалась на две зоны, одной из которых был тонкий периферийный слой (*rim*-слой). Расчеты были проведены для *rim*-слоя с толщиной 100, 200 и 300 мкм. Результаты расчетов представлены в табл. 2.

Из табл. 2 видно, что *rim*-слой имеет повышенное, по сравнению со средним, выгорание топлива. Элементный состав *rim*-слоя характеризуется повышенным содержанием плутония, причем содержание плутония в *rim*-слое выше, чем его содержание в среднем по таблетке при одинаковых значениях глубины выгорания. Для иллюстрации данного утверждения можно сравнить содержание Pu в таблетке при среднем выгорании 100 ГВт сут/т U – 19,9 кг/т (см. табл. 1) и содержание плутония в *rim*-слое толщиной 300 мкм при выгорании 107 ГВт сут/т U – 28,0 кг/т (см. табл. 2).

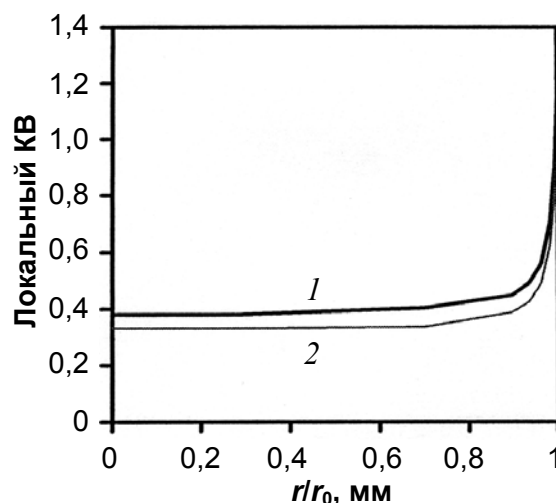


Рис. 2. Локальный КВ по радиусу топливной таблетки: 1 – обогащение 4,4 % по  $^{235}\text{U}$ ; 2 – обогащение топлива 5,5 % по  $^{235}\text{U}$

Таблица 1

Сравнение расчетов по программам SCALE и UNK

Выгорание В, ГВт·сут/т U	В = 80 UNK	В = 80 SCALE	В = 100 UNK
Актиноиды, кг/т			
U	896,0	893,0	872,2
Np	1,22	1,46	1,4
Pu	18,2	17,7	19,9
Am	0,69	0,76	1,0
Cm	0,54	0,52	1,1
Сумма	916,65	913,44	895,4

Таблица 2

Элементный состав актиноидов в *rim*-слое выгоревшего топлива

Выгорание В, ГВт·сут/т U	80 UNK	<i>rim</i> , 100 мкм В = 130	<i>rim</i> , 200 мкм В = 115	<i>rim</i> , 300 мкм В = 107
Актиноиды, кг/т				
U	896,0	823,0	844,4	856,9
Np	1,22	1,7	1,7	1,6
Pu	18,2	36,7	31,3	28,0
Am	0,69	1,9	1,5	1,3
Cm	0,54	1,5	1,2	1,1
Сумма	916,65	864,8	879,7	888,9

Повышенная скорость накопления плутония в периферийном слое топливной таблетки может быть использована для экономии делящихся изотопов. Для этого топливную таблетку необходимо выполнить из 2 частей. Центральная часть таблетки традиционно будет состоять из топлива с большим количеством делящихся изотопов, например, из обогащенного урана. Вторая часть – тонкий периферийный слой будет состоять из топлива, в котором содержание делящихся изотопов значительно меньше, чем в центральной части, а содержание сырьевых изотопов такое же или увеличенное. Примером материала для второй части комбинированной таблетки может служить природный или отвалный уран.

Для оценки нейтронно-физических параметров топливного цикла с топливом из комбинированных таблеток были проведены расчеты по программе UNK. В расчетах использовалась четырехзонная цилиндрическая модель ячейки ВВЭР-1000.

Результаты расчетов относительного энерговыделения в периферийном слое в различные моменты кампании представлены на рис. 3.

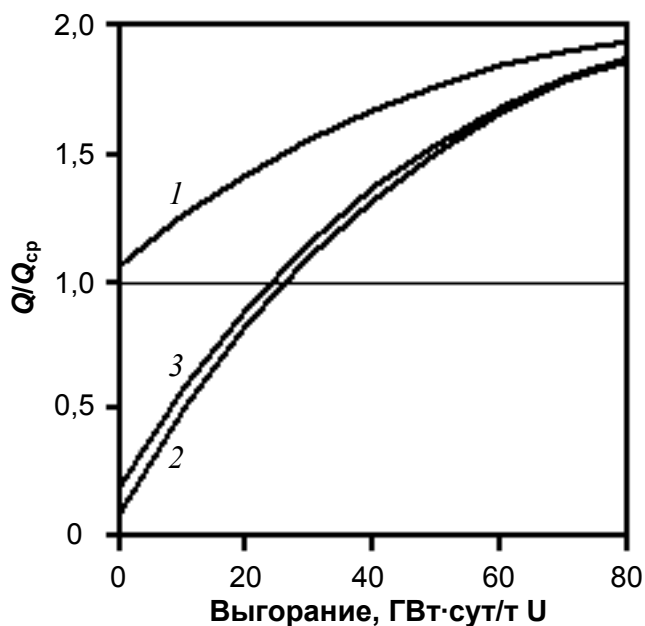


Рис. 3. Относительное энерговыделение в периферийном слое толщиной 100 мкм в зависимости от средней по таблетке глубины выгорания и начального обогащения периферийного слоя по  $^{235}\text{U}$ :  
1 – 5,5 %; 2 – 0,2 %; 3 – 0,71%

В процессе выгорания топлива комбинированной таблетки в начальный период (до 20–30 ГВт·сут/т U) в периферийном слое с обогащением меньшим, чем в остальной части таблетки, энерговыделение будет ниже, чем в центральной части таблетки. При увеличении глубины выгорания энерговыделение в периферийном слое будет возрастать за счет накопления делящихся изотопов и начнет превышать энерговыделение в центральной части составной таблетки.

Средние глубины выгорания в обеих частях таблетки сравниваются при глубине выгорания 80 ГВт·сут/т U. Таким образом, *rim*-слой начинает образовываться при более высокой средней по таблетке глубине выгорания, чем у штатного топлива.

Для оценки краевой зоны рассчитано выгорание модели ТВС U42G6 (в состав ТВС входят 244 твэла с содержанием  $^{235}\text{U}$  – 4,2 % (U42), 66 твэлов – 3,7 % (U37) и 6 твэлов с поглотителем), в которой в каждом твэле был выделен внешний слой толщиной 100 мкм. Внешние слои различных твэлов были объединены в три выгорающих материала. Первый материал соответствовал внешним слоям из U42, второй – U37, третий – твэлам с поглотителем U33G. Остальные выгорающие материалы соответствовали внутренним зонам твэлов аналогичным образом. Среднее по ТВС выгорание составило 45 ГВт·сут/т U (табл. 3).

Из табл. 3 видно, что во внешнем слое толщиной 100 мкм всех твэлов и твэлов с поглотителем выгорание и количество плутония значительно (в 1,5 и 2,2 раза) превышают соответствующие средние значения и практически не различаются. Если краевая зона будет образовываться в твэлах без поглотителя, то она будет образовываться и в твэлах с поглотителем. Поэтому, можно предложить использование комбинированных твэлов с поглотителем по аналогии с ранее рассмотренными комбинированными твэлами без поглотителей. Комби-



нированный ТВЭЛ с поглотителем будет состоять из двух зон: внутренней (основной) и внешней (покрытие) толщиной 50–200 мкм.

Таблица 3

Выгорание и содержание плутония во внешних слоях, % среднего значения по ТВС

Характеристика	Материал		
	1	2	3
Масса:			
В	156	166	156
$^{239}\text{Pu}$	221	223	222
Все изотопы Pu	221	227	224

**Глава 2** посвящена измерению теплофизических свойств оксидного ядерного топлива. Показано, что для исследования теплопроводности топливных материалов одним из распространенных методов является метод лазерной вспышки, так же называемый методом Паркера. Помимо таких преимуществ, как малые размеры, простая геометрия образцов и малое время измерений, этот метод позволяет определять теплоемкость и температуропроводность в одном эксперименте. Идея метода заключается в том, что на одну поверхность образца, выполненного в виде диска, воздействует короткий импульс лазерного излучения, а вызванное этим возмущение температуры регистрируется на противоположной поверхности образца с помощью термопары или фотодатчика. Полученная информация в этом случае содержит данные, связанные с коэффициентом температуропроводности и теплоемкостью образца. Данный метод основывается на следующих допущениях: 1) образец гомогенный; 2) тепловой поток в образце одномерный; 3) энергия импульса поглощается в тонком поверхностном слое, толщина которого много меньше толщины образца; 4) длительность импульса пренебрежимо мала по сравнению со временем прохождения тепловой волны через образец; 5) отсутствуют тепловые потери с образца.

С учетом предположений 1–5 аналитическое решение уравнения теплопроводности, описывающее процесс нагрева образца лазерным импульсом, выражается формулой Карслоу и Эгера для бесконечной теплоизолированной пластины. Существует несколько приемов расчета коэффициента температуропроводности, основанных на полученном решении. В самом распространенном из них коэффициент теплопроводности  $\lambda$  определяется соотношением:

$$\lambda = C_p \cdot \rho \cdot a = C_p \rho (1,37/\pi^2 \tau_{1/2}), \quad (2)$$

где  $a$  – температуропроводность,  $\tau_{1/2}$  – значение времени на полувысоте нагрева (рис. 4),  $C_p$  – удельная теплоемкость при постоянном давлении,  $\rho$  – плотность образца.

Предположения 1–3 могут быть выполнены с хорошей точностью путем выбора геометрии образца и схемы постановки эксперимента. Длительность импульса может варьироваться с помощью блока управления лазером, так же ее малость по сравнению со временем прохождения тепловой волны можно обеспечить путем подбора оптимальной толщины образца. Кроме того, необходимо отметить, что учет влияния длительности импульса на получаемые результаты является достаточно простой задачей, а для материалов с невысокой теплопроводностью можно и вовсе пренебречь этим фактором.

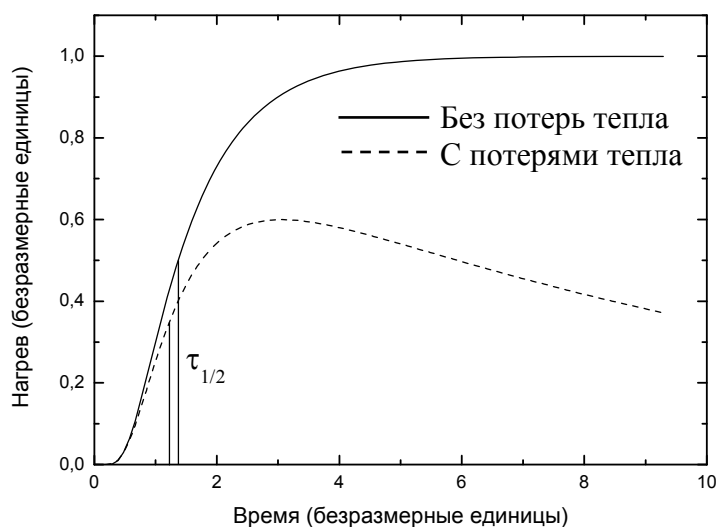


Рис. 4. Зависимость нагрева образца от времени

Наибольшую проблему в реальном эксперименте представляет собой пятое предположение – отсутствие тепловых потерь с образца. Это невозможно обеспечить, особенно при высоких температурах. С увеличением начальной температуры образца роль тепловых потерь возрастает и экспериментальное значение времени  $\tau_{1/2}^{\text{exp}}$  уменьшается (см. рис. 4). Следовательно, величина коэффициента теплопроводности, вычисленная по формуле (2), становится больше истинной величины.

При учете тепловых потерь образца помимо неизвестного параметра – коэффициента теплопроводности, появляются и другие неизвестные – коэффициенты поглощения излучения образца и стенок камеры. В связи с этим проведено теоретическое исследование поведения решения задачи теплопроводности в экспериментальных условиях и разработан метод, корректно учитывающий влияние граничных условий на получаемые результаты.

Моделирование проведено для следующих условий. Цилиндрический образец  $\text{UO}_2$  диаметром  $d$  и длиной  $l$  ( $d \sim 10l$ ) находится в техническом вакууме ( $p_i \leq 0,1$  Па) в камере, температура стенок которой  $T_0$ . Температура образца совпадает с температурой стенок камеры. В начальный момент времени на один из торцов образца воздействуют импульсным лазерным излучением мощности  $P$  и шириной пучка  $\sim d$ . Характерное время импульса лазера  $\tau \sim 1$  мс. Под воздействием лазерного импульса образец нагревается на величину  $\Delta T \leq 12$  К, а затем за счет инфракрасного излучения охлаждается до первоначальной температуры  $T_0$  за 5–6 с. Детектор на другом торце образца фиксирует зависимость его температуры от времени. Требуется определить коэффициент теплопроводности вещества, из которого сделан образец.

Для таких условий уравнение теплопроводности, описывающее процесс изменения температуры в образце, одномерное и имеет вид:

$$C_p(T)\rho(T)\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \lambda(T(x,t)) \frac{\partial T}{\partial x}, \quad 0 < x < l(T), \quad 0 < t < t_0, \quad (3)$$

где  $x$  – координата вдоль оси образца,  $T$  – температура,  $C_p(T)$  – удельная теплоемкость при постоянном давлении,  $\rho(T)$  – плотность,  $\lambda(T)$  – коэффициент теплопроводности,  $l$  – длина образца,  $t_0$  – интервал замера температуры  $\sim 3\div 4$  с.

В условиях эксперимента нагрев образца  $\Delta T$  не превышал 1 % от начальной температуры  $T_0$ , поэтому изменение коэффициента теплопроводности при нагреве образца

$$\Delta\lambda = \frac{d\lambda(T_0)}{dT_0} \frac{\Delta T}{T_0} \text{ мало. Рассуждая аналогичным образом, можно показать, что изменение и}$$

других параметров ( $C_p$ ,  $\rho$ ,  $l$ ,  $d$ ) уравнения теплопроводности (3) при нагреве образца также мало. Следовательно, в условиях эксперимента коэффициент теплопроводности, плотность, теплоемкость, геометрические параметры образца – постоянные величины, зависящие только от начальной температуры образца.

Учитывая, что  $\Delta T/T_0 \ll 1$ , уравнение теплопроводности (3) можно переписать (4) дополнив начальными и граничными условиями (5–7):

$$C_p(T_0)\rho\frac{\partial T}{\partial t} = \lambda(T_0)\frac{\partial^2 T}{\partial x^2}, \quad 0 < x < l, \quad 0 < t < t_0, \quad (4)$$

$$-\lambda(T_0)\frac{\partial T(0,t)}{\partial x} = \sigma\varepsilon_2 T_0^4 - \sigma\varepsilon_1 T^4(0,t) + \frac{P(t)}{S}, \quad (5)$$

$$-\lambda(T_0)\frac{\partial T(l,t)}{\partial(-x)} = \sigma\varepsilon_2 T_0^4 - \sigma\varepsilon_1 T^4(l,t), \quad (6)$$

$$T(x,0) = T_0, \quad (7)$$

где  $\sigma$  – постоянная Стефана-Больцмана,  $S = \pi d^2/4$  – площадь торца образца,  $\varepsilon_2$  и  $\varepsilon_1$  – коэффициенты серости стенок камеры и образца, соответственно.

Коэффициенты серости, введенные в граничные условия (5)–(7) учитывают отличие плотности потока излучения стенок камеры и образца от плотности потока излучения абсолютно черных тел. Поглощением излучения при прохождении через технический вакуум бу-

дем пренебрегать, поскольку выполнено условие  $\kappa l_0 \ll 1$  ( $\kappa$  – коэффициент поглощения излучения в техническом вакууме,  $l_0$  – характерные размеры камеры – расстояние от стенок камеры или от источника до образца). Излучением с боковой поверхности образца также будем пренебрегать, поскольку площадь торцов велика по сравнению с площадью боковой поверхности ( $d \gg l$ ).

Анализ задачи проводили в рамках теории возмущений. В нулевом порядке теории возмущений, т.е. в отсутствие охлаждения образца за счет инфракрасного излучения с его поверхности, после ряда преобразований на заднем торце образца  $x = l$  получим:

$$\Delta T(l, t) = \theta(t) \Delta T_{\max} \left[ 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp\left(-\frac{\pi^2 n^2 \lambda t}{l^2 C_p \rho}\right) \right], \quad (8)$$

где  $\Delta T_{\max} = Q/C_p M$  – максимальный нагрев,  $M = \rho V$  – масса образца,  $V = Sl$  – его объем,  $\theta(t)$  – функция Хевисайда.

Из формулы (8) следует: во-первых, максимальный нагрев образца определяется только количеством теплоты, полученным от лазерного импульса за время  $\tau$ ; во-вторых, тангенс угла наклона кривой нагрева на высоте  $\Delta T_{\max}/2$  пропорционален величине  $\sim \Delta T_{\max} \pi^2 / t_{\text{хар}}$ , т.е. определяется теплопроводностью образца (задача Паркера).

Найдем решение задачи теплопроводности в первом порядке теории возмущений. В случае, когда коэффициенты серости совпадают и равны единице  $\varepsilon_2 = \varepsilon_1 = 1$ , и учитывая, что  $\Delta T \ll T_0$ , можно формально провести разложение:

$$q(t) = \sigma(T^4 - T_0^4) = \sigma\left((T_0 + \Delta T)^4 - T_0^4\right) \approx 4\sigma T_0^3 \Delta T, \quad (9)$$

где нагрев берется из нулевого приближения по вкладу теплоизлучения (8).

С учетом этого разложения решение уравнения теплопроводности можно выразить через функцию Грина  $G(x, x_0, t)$ :

$$T(x, t) = T_0 + \frac{Q}{C_p \rho S} G(x, 0, t) + \delta T. \quad (10)$$

Первые два слагаемых решения (10) – это начальная температура плюс нагрев (8), а  $\delta T$  – поправка на черное излучение.

На временах, больших по сравнению с характерным:  $t \gg l^2 C_p \rho / \pi \lambda \sim 10^{-2} \div 10^{-1}$  с, функция  $\delta T(x, t)$  имеет вид:

$$\delta T(x, t) = -\Delta T_{\max} \frac{t}{\tau_0}, \quad t_{\text{хар}} / \pi^2 \ll t \leq \tau_0, \quad (11)$$

где  $\tau_0^{-1} = 4\sigma T_0^3 \Delta T_{\max} 2S/Q$  – характерное время остывания, т.е. время за которое нагретый образец остынет до температуры стенок камеры  $T_0$ .

Из выражения (11) следует, что для времен, при которых решение в нулевом приближении теории возмущений выходит на стационарное значение, влияние черного излучения сводится к линейному по времени уменьшению температуры образца, причем остывание (11) однородно по объему образца; тангенс угла наклона кривой нагрева к оси времени на интервале  $t_{\text{хар}}/\pi^2 \ll t \leq \tau_0$  равен отношению максимальной температуры нагрева к характерному времени остывания.

Учтем отличия излучения стенок и образца от излучения абсолютно черных тел, восстановив коэффициенты серости в поправке на инфракрасное излучение (11):

$$\delta T(x, t) = -\varepsilon_1 \left( \Delta T_{\max} + \frac{1}{4} \left( 1 - \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \right) T_0 \right) \frac{t}{\tau_0}. \quad (12)$$

Таким образом, если  $\varepsilon_1 > \varepsilon_2$  и максимальный нагрев образца диоксида урана меньше величины  $\Delta T_{\max} < (\varepsilon_1 - \varepsilon_2) T_0 / (1 - \varepsilon_1)$ , то при таких соотношениях параметров серости и мак-

симального нагрева образец будет остывать быстрее по отношению к скорости остывания абсолютно черного тела.

Аналитический подход, основанный на теории возмущений, позволяет найти лишь асимптотику решения задачи теплопроводности (4)–(7) и качественно проанализировать поведение решения в зависимости от соотношения параметров задачи. Вид кривой нагрева на границе образца  $x = l$  в промежуточных интервалах времени остается в таком подходе неопределенным. Для более точной подгонки решения уравнения теплопроводности к экспериментальной кривой нагрева требуется знание о поведении решения в любой момент времени. Поэтому задачу теплопроводности (4)–(7) необходимо решать численно.

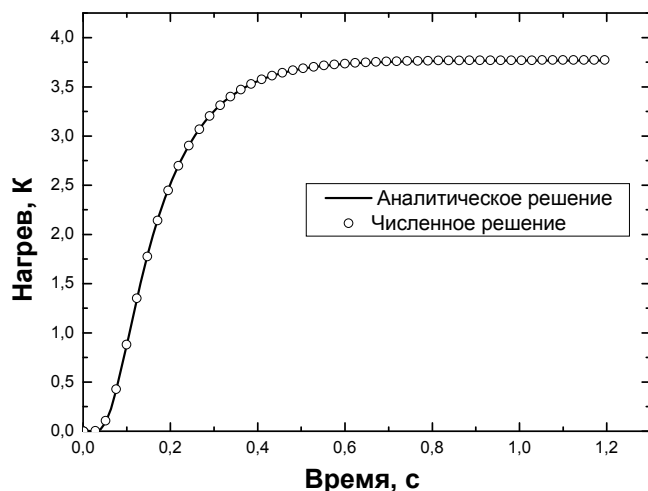


Рис. 5. Численное и аналитическое решение задачи теплопроводности (4)–(7) при пренебрежении инфракрасным излучением (коэффициенты серости равны нулю)

При рассмотрении влияния охлаждения за счет инфракрасного излучения на поведение кривой нагрева образца на заднем торце  $x = l$  установлено, что роль инфракрасного излучения возрастает с повышением исходной температуры образца. Спад температуры после максимума на кривой нагрева за счет излучения практически линеен (рис. 6), что совпадает с зависимостью (11).

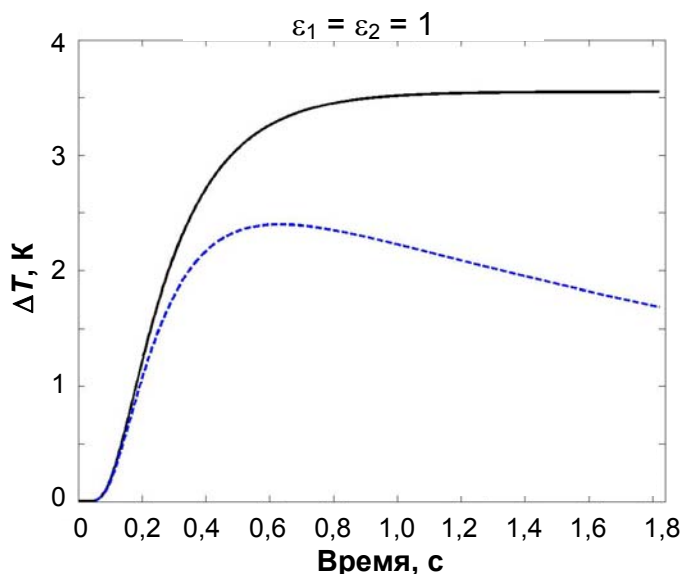


Рис. 6. Зависимость температуры образца  $UO_2$  от времени с учетом инфракрасного излучения (прерывистая кривая) и в его отсутствие (сплошная кривая) для начальной температуры образца 1500 К

На рис. 5 изображено численное и аналитическое решение (4)–(7) задачи теплопроводности в отсутствие инфракрасного излучения для прямоугольного импульса на границе образца  $x = l$ . Параметры задачи теплопроводности для численного и для аналитического решения одинаковы. Из рис. 5 видно, что численное и аналитическое решение совпадают.

Показано, что при малой длительности импульса решение задачи теплопроводности зависит только от интегральной характеристики импульса – количества энергии, поглощенной образцом, а не от формы лазерного импульса.

При определении теплопроводности образцов  $UO_2$  постановке задачи известными величинами являются: средняя мощность и длительность лазерного импульса, температура стенок и параметры образца (теплоемкость, плотность материала образца, его геометрия; начальная температура). Экспериментально измеряется поведение температуры на задней поверхности образца. При этом неизвестными в задаче теплопроводности (4)–(7) являются коэффициенты серости  $\epsilon_1$  и  $\epsilon_2$ , поглощенная образцом энергия  $Q$  и зависимость коэффициента теплопроводности  $UO_2$   $\lambda(T_0)$  от температуры. Предложенная численная схема позволяет при любых заданных значениях коэффициента теплопроводности, поглощенной энер-

гии и коэффициентов серости найти поведение температуры образца в пространстве и времени.

Затем неизвестные параметры  $\lambda(T_0)$ ,  $Q$ ,  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_2$  определяются с помощью нелинейного метода наименьших квадратов, чтобы численное решение уравнений (4)–(7) на задней поверхности образца совпадало с экспериментально измеренным поведением температуры. Стартовые значения неизвестных параметров и интервал их изменения подбирались исходя из предварительной обработки имеющихся в литературе экспериментальных результатов по известным методикам и простым физическим представлениям. Например, максимальное значение количества поглощенной энергии  $Q$  не должно превышать максимальное значения энергии импульса, коэффициенты серости обязаны лежать в интервале от 0 до 1 и т.д.

Описанный выше метод позволяет найти коэффициент теплопроводности как функцию начальной температуры образца в виде набора экспериментальных точек и при наличии утечек тепла. Этот метод был применен для нахождения зависимости теплопроводности  $UO_2$  от температуры. Пример кривой нагрева для образца  $UO_2$ , подобранной к экспериментальным точкам по методу наименьших квадратов, приведен на рис. 7.

Измерение теплофизических свойств оксидного ядерного топлива проводили на установке «Квант-Б», блок-схема которой представлена на рис. 8. Вакуум в рабочем объеме поддерживался на уровне  $0,1 \div 0,01$  Па. В качестве источника теплового импульса использовался специально разработанный оптический квантовый генератор (ОКГ) (5) с рубиновым активным элементом (длина волны излучения – 0,69 мкм). Для записи изменения температуры тыльной поверхности образца от времени после воздействия теплового импульса могут быть использованы термопара или пирометр. Важным условием является обеспечение надежного теплового контакта между керамическим образцом и термопарой, для чего на тыльную поверхность образца наносится слой платиновой черни и тонкие электроды ( $\varnothing = 50 - 100$  мкм) платинородий-платиновой термопары вжигаются в поверхность образца с помощью платиновой пасты.

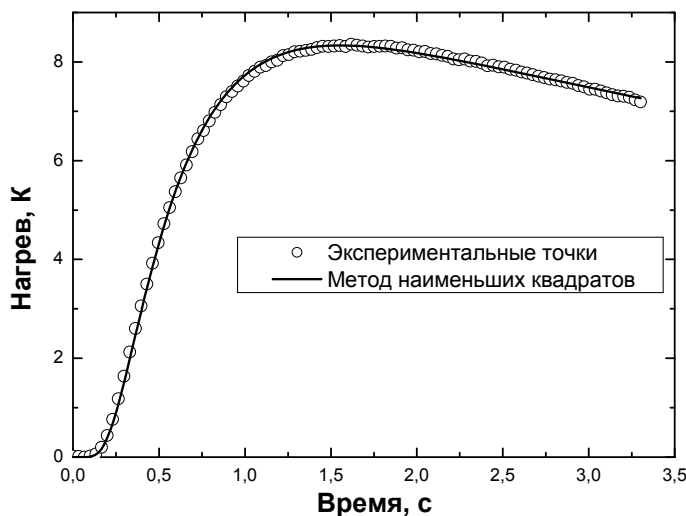


Рис. 7. Пример подбора кривой нагрева по методу наименьших квадратов к экспериментальным точкам

К полученной экспериментально температурной зависимости коэффициента теплопроводности диоксида урана можно применить различные способы аналитической аппроксимации, но правильной будет отвечающая теории решёточной теплопроводности. Поэтому температурная зависимость коэффициента теплопроводности подбиралась в виде степенной функции  $\sim T^{-\nu}$ , которая удовлетворительно описывает поведение теплопроводности диэлектриков в широком интервале температур. На рис. 9 изображен результат аппроксимации температурной зависимости коэффициента теплопроводности диоксида урана степенной функцией температуры. Видно, что измеренные значение коэффициента теплопроводности хорошо согласуется с теорией Дебая вплоть до 1800 К.

С целью определения влияния на коэффициент теплопроводности  $UO_2$  пористости, нестехиометрии, выгорающего поглотителя нейтронов  $Gd_2O_3$  и растворимых в матрице топлива имитаторов продуктов деления (ИПД) были определены температурные зависимости  $\lambda$  образцов из четырех партий, параметры которых даны в табл. 4.

Из приведенной на рис. 10 температурной зависимости коэффициента теплопроводности образцов  $UO_2$  с различной плотностью, добавками имитаторов продуктов деления (образцы 3 и 4) и выгорающим поглотителем нейтронов (образец 4) хорошо видно какое силь-

ное влияние оказывают на величину  $\lambda$  пористость, нестехиометрия, продукты деления и выгорающий поглотитель.

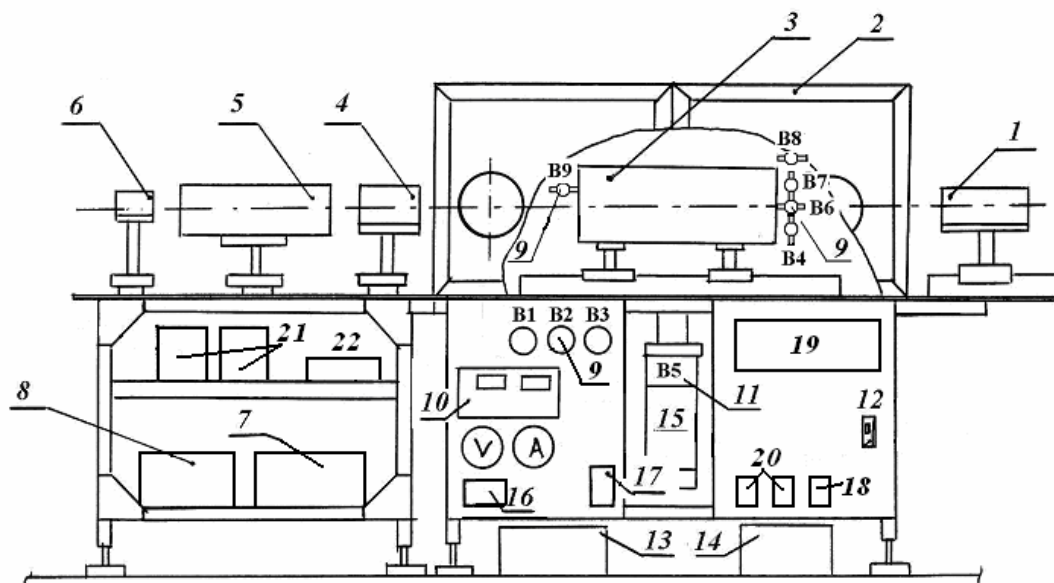


Рис. 8. Блок-схема установки «Квант-Б»:

1 – пирометр; 2 – защитный бокс; 3 – рабочая камера; 4 – оптический блок измерителя энергии; 5 – излучатель ОКГ (импульсный лазер); 6 – блок оптической синхронизации пирометра; 7 – блок накачки ОКГ; 8 – блок охлаждения ОКГ; 9 – вентили вакуумной и газовой систем; 10 – вакуумметр типа ВИТ-1А-П; 11 – вентиль диффузионного насоса; 12 – включатель печи диффузионного насоса; 13 – форвакуумный насос; 14 – понижающий трансформатор; 15 – диффузионный насос; 16 – тиристорный блок; 17 – терморегулятор «Минитерм»; 18 – включатель нагрева печи рабочей камеры; 19 – индикаторная панель; 20 – пакетники электропитания системы нагрева и форвакуумного насоса; 21 – цифровые индикаторы измерителей энергии; 22 – блок управления и сбора данных

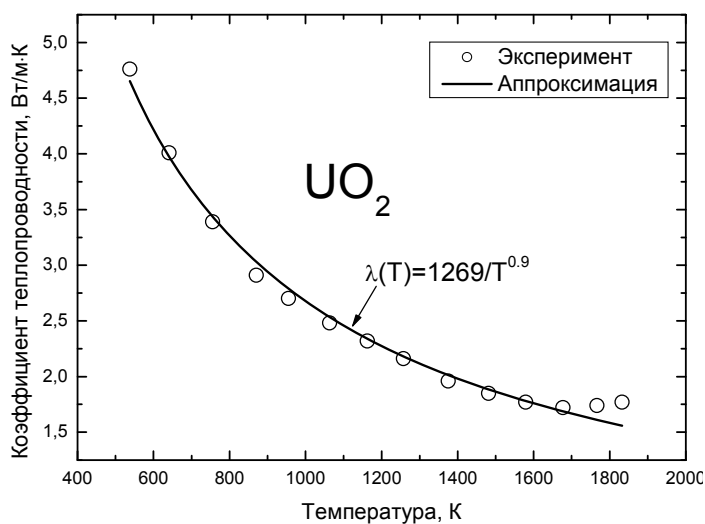


Рис. 9. Аппроксимация коэффициента теплопроводности степенной функцией в рамках теории Дебая

В образцах партии 4 пористость составляла 18 %, а добавка  $Gd_2O_3$  увеличена до 17 % (обычно в твэлах содержание  $Gd_2O_3$  не превышает 8 %), чтобы проверить влияние на  $\lambda$  накопление плутония в *rim*-зоне и рост пористости при глубоком выгорании.

Из полученных результатов следует, что при 600 К коэффициент теплопроводности в *rim*-зоне может снижаться до 1 Вт/м·К, т.е. более чем в 5 раз. Этот факт необходимо учитывать при проектировании твэлов с оксидным ядерным топливом для глубоких выгораний.

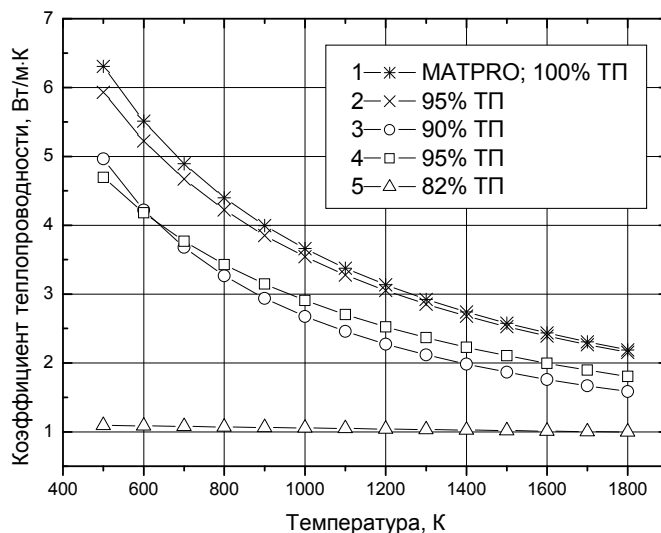
Таблица 4

Характеристики образцов  $UO_2$

№ партии	$\rho_0$ , кг/м <sup>3</sup>	ИПД, мас. %	$Gd_2O_3$ , мас. %	Пористость, %	О/М
1	10,42	0	0	5,0	2,001
2	9,92	0	0	9,5	2,001
3	10,05	5	0	5,0	2,001
4	7,02	5	17	18,0	2,002

Рис. 10. Температурная зависимость коэффициента теплопроводности образцов  $UO_2$  с добавками имитаторов продуктов деления, выгорающего поглотителя, разной пористостью и величиной О/М:

1 – 100 % теоретической плотности (ТП), без добавок; 2 – 95 % ТП, О/М = 2,001, без добавок; 3 – 90,5 % ТП, О/М = 2,001, без добавок; 4 – 95 % ТП, О/М = 2,001, 5 % ИПД; 5 – 82 % ТП, О/М = 2,002, 5% ИПД, 17 %,  $Gd_2O$



В главе 3 рассмотрены стационарное распределение температуры в твэле ВВЭР при глубоком выгорании, математические модели, описывающие распределение температуры с учетом источника тепловыделения в топливе и *rim*-слое, заполненного гелием зазора между топливной таблеткой и оболочкой, наличия оксидного слоя на циркониевой оболочке.

Анализ указанных математических моделей выполнен с помощью двух подходов. Один из них – *аналитический* подход, суть которого основана на построении решения ряда стационарных задач о распределении температуры в тепловыделяющем элементе. При использовании аналитического подхода рассмотрены различные варианты особенностей твэла с таблетками из оксидного ядерного топлива. При этом аналитические решения задач получены с учетом зависимости коэффициента теплопроводности от температуры и выгорания в топливном сердечнике и *rim*-слое. Второй подход – *математическое моделирование* процессов теплопроводности в тепловыделяющем элементе. Такое моделирование рассматривается с помощью численных методов путем перехода от исходных задач, записанных в дифференциальной форме к разностным уравнениям. При таком подходе решаются нестационарные задачи о распределении температуры в твэле. Оба подхода взаимно дополняют друг друга и позволяют рассматривать данную работу как полное и законченное теоретическое изучение температурного поля в тепловыделяющем элементе.

На рис. 11 приведена схема твэла, а размеры после его сборки – в табл. 5.

Пусть  $T_1(r, t)$  – зависимость температуры от радиуса  $r$  и времени  $t$  в топливе на основе  $UO_2$ ,  $T_2(r, t)$  – зависимость температуры в зазоре между топливом и оболочкой, наполненном гелием,  $T_3(r, t)$  – зависимость температуры в оболочке от  $r$  и  $t$ ,  $\tilde{T}_1(r, t)$  – температура в *rim*-слое,  $\tilde{T}_3(r, t)$  – температура в  $ZrO_2$ .

Нелинейное дифференциальное уравнение для описания температуры в топливном сердечнике ядерного реактора может быть записано как

$$C_p(r, T) \rho(r, T) \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \lambda(r, T) r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + q(r), \quad r_0 \leq r \leq R_2, \quad (13)$$

где  $C_p(r, T)$  – удельная теплоемкость,  $\rho(r, T)$  – плотность,  $\lambda(r, T)$  – теплопроводность,  $q(r)$  – скорость равномерного тепловыделения в объеме, независящая от температуры.

Пусть исходная температура будет иметь следующий вид

$$T(r, t = 0) = \varphi_0. \quad (14)$$

Граничные значения для численного моделирования при  $r = r_0$  будут иметь вид

$$\left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_{r=r_0} = 0, \quad (15)$$

и при  $r = R_2$

$$T(r = R_2, t) = T_w, \quad (16)$$

где  $T_w$  – температура внешней стенки оболочки твэла.

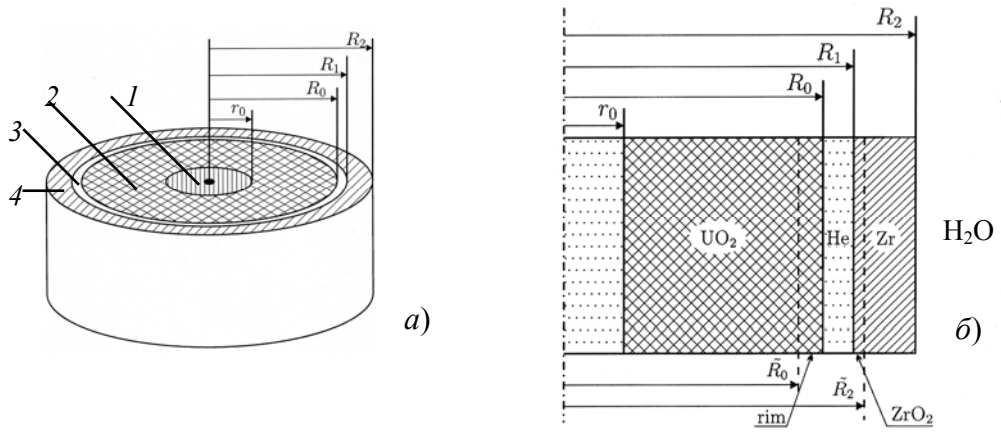


Рис. 11. Схема тепловыделяющего элемента: *a* – сечение по радиусу твэла, *б* – вертикальный разрез твэла; 1 – центральное отверстие, 2 – топливный сердечник, 3 – зазор, 4 – оболочка,  $r_0$  – радиус центрального отверстия,  $R_0$  – радиус топливного сердечника,  $R_1$  – внешний радиус зазора между топливом и оболочкой,  $R_2$  – внешний радиус оболочки,  $\tilde{R}_0$  – внутренний радиус *rim*-слоя,  $\tilde{R}_2$  – внешний радиус слоя  $ZrO_2$

Таблица 5

Размеры твэла после сборки

Радиус	$r_0$	$R_0$	$R_1$	$R_2$
Размер, мм	0,75	3,775	3,865	4,550

Теплоемкость  $C_p$  оксидного топлива является важным параметром определения температуры топлива при стандартных, переходных и аварийных условиях легководного реактора. Значение плотности и теплоемкости диоксида урана, *rim*-слоя, газа в зазоре и  $ZrO_2$  оболочки отличаются друг от друга. Сформулируем эти величины как кусочно-непрерывную функцию

$$\rho(r, T) C_p(r, T) = \begin{cases} \rho_1(T) C_{p,1}(T), & r_0 \leq r < \tilde{R}_0, \\ \tilde{\rho}_1(T) \tilde{C}_{p,1}(T), & \tilde{R}_0 \leq r < R_0, \\ \rho_2 C_{p,2}, & R_0 \leq r < R_1, \\ \tilde{\rho}_3 \tilde{C}_{p,3}, & R_1 \leq r < \tilde{R}_2, \\ \rho_3 C_{p,3}, & \tilde{R}_2 \leq r < R_2. \end{cases} \quad (17)$$

Физические параметры и зависимости от температуры плотности и удельной теплоемкости для топлива, зазора, оксида циркония и оболочки взяты из литературы.

Коэффициенты теплопроводности топлива и *rim*-слоя можно представить с помощью классической модели переноса фононов

$$\lambda_1(T) = \frac{1}{A + cbu + BT}, \quad (18)$$

где  $A$ ,  $B$  и  $c$  – константы, а  $bu$  – локальное выгорание в ядерном топливе и *rim*-слое.

Для численного моделирования распределения температуры в ядерном топливе и в *rim*-слое предположим, что коэффициент теплопроводности можно представить в виде кусочно-непрерывной функции

$$\lambda(T, r) = \begin{cases} \frac{1}{A+BT}, & r_0 \leq r < \tilde{R}_0 \\ \frac{1}{A_1+B_1T}, & \tilde{R}_0 \leq r < R_0 \\ \lambda_1, & R_0 \leq r < R_1 \\ \tilde{\lambda}_2, & R_1 \leq r < \tilde{R}_2 \\ \lambda_2, & \tilde{R}_2 \leq r < R_2, \end{cases} \quad (19)$$



где  $A, B, A_1, B_1, \lambda_1, \tilde{\lambda}_1, \tilde{\lambda}_2, \lambda_2$  – константы. Для численного моделирования рассматриваемой задачи значения этих величин также брались из литературы.

Объемную скорость тепловыделения для численного моделирования можно записать в виде

$$q(r) = \begin{cases} q_0, & r_0 \leq r < \tilde{R}_0 \\ q_1, & \tilde{R}_0 \leq r < R_0 \\ 0, & R_0 \leq r < R_2, \end{cases} \quad (20)$$

где  $q_0$  и  $q_1$  – константы.

На рис. 12 показано изменение температуры в топливном сердечнике ядерного реактора типа ВВЭР при  $q_L = 200$  Вт/см.

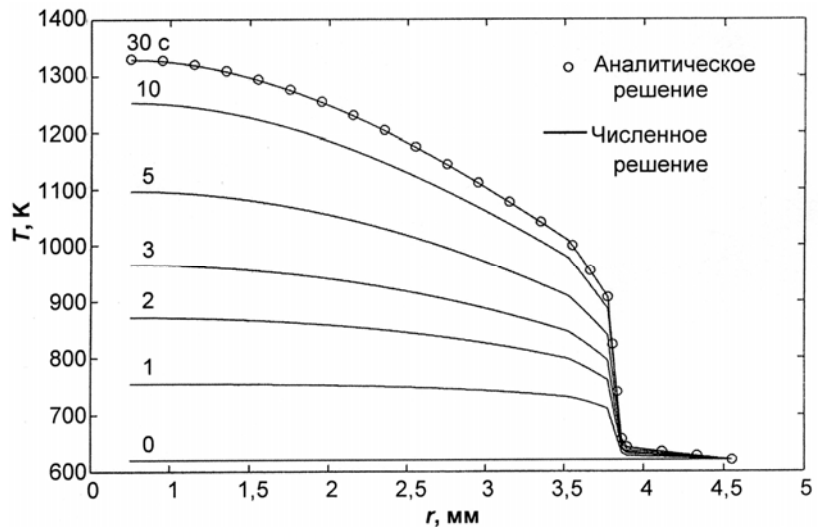


Рис. 12. Изменение температуры в ядерном топливном сердечнике для высокого выгорания при  $q_L = 200$  Вт/см: цифры у кривых – время от начала работы твэла в реакторе

Из рис. 12 видно, что стационарное состояние ядерного топливного сердечника с выгоранием достигается за время 30 с при изменении режимов работы твэла. Установлено, что время выхода на стационарный режим при  $q_L = 400$  Вт/см, также как и при  $q_L = 200$  Вт/см, не превышает 30 с. Следовательно, основные температурные режимы ядерных топливных сердечников являются стационарными и можно считать, что распределение температуры в топливном сердечнике ядерного реактора – стационарная задача.

Численное моделирование зависимости потока тепла от времени при  $r = R_2$  приведено на рис. 13. Видно, что время перехода от исходного состояния до стационарного поведения составляет не более 40 с. Это время зависит от мощности источника и растет с увеличением мощности, причем стационарное состояние достигается довольно быстро (за 45–60 с).

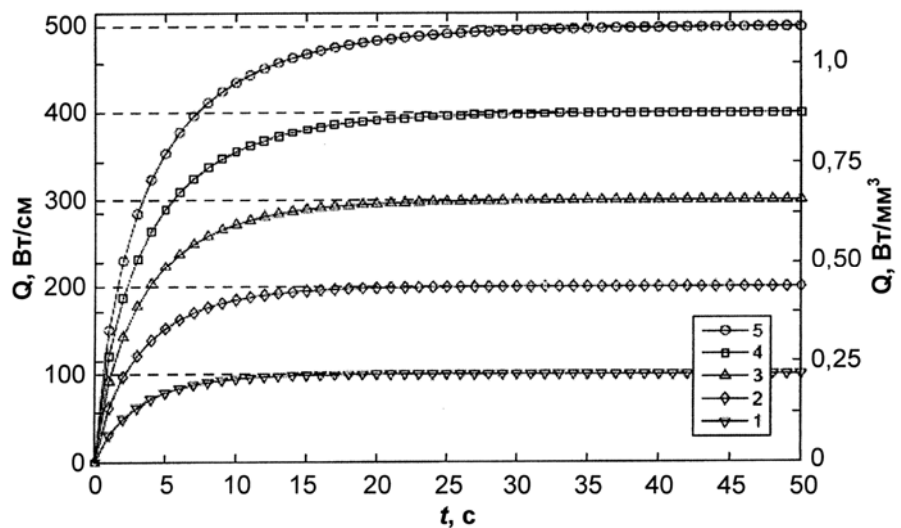


Рис. 13. Зависимость потока тепла через поверхность при  $r = R_2$  для источников с:  
1 –  $q_L = 100$  Вт/см;  
2 – 200 Вт/см;  
3 – 300 Вт/см;  
4 – 400 Вт/см;  
5 – 500 Вт/см  
(выгорание 120 ГВт·сут/т U)

Как показано выше, основное поведение ядерного топливного сердечника является стационарным. Следовательно, можно считать, что распределение температуры в топливном

сердечнике ядерного реактора соответствует указанной выше задаче, когда  $\partial T/\partial t = 0$ . В этом случае имеем следующую постановку задачи для распределения температуры.

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( \frac{r}{A + BT_1} \frac{dT_1}{dr} \right) + q = 0, \quad r_0 < r < \tilde{R}_0 \quad (21)$$

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( \frac{r}{A_1 + B_1 \tilde{T}_1} \frac{d\tilde{T}_1}{dr} \right) + q_1 = 0, \quad \tilde{R}_0 < r < R_0 \quad (22)$$

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( r \lambda_1 \frac{dT_2}{dr} \right) = 0, \quad R_0 < r < R_1 \quad (23)$$

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( r \tilde{\lambda}_2 \frac{d\tilde{T}_3}{dr} \right) = 0, \quad R_1 < r < \tilde{R}_2 \quad (24)$$

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( r \lambda_2 \frac{dT_3}{dr} \right) = 0, \quad \tilde{R}_2 < r < R_2 \quad (25)$$

где  $T_1(r)$ ,  $\tilde{T}_1(r)$ ,  $T_2(r)$ ,  $\tilde{T}_3(r)$  и  $T_3(r)$  – зависимости температуры от радиуса в топливе, *rim*-слое, зазоре, оксиде циркония и оболочке соответственно,  $q$  и  $q_1$  – мощности объемных источников в топливе и *rim*-слое.

Решение системы уравнений (21)–(25) с использованием граничных условий  $r = r_0$ ,  $r = \tilde{R}_0$ ,  $r = R_0$ ,  $r = R_1$ ,  $r = \tilde{R}_2$  и  $r = R_2$  позволяет получить стационарную температуру в твэле..

При рассмотрении распределения температуры в топливном сердечнике ядерного реактора с учетом *rim*-слоя и пленки оксида циркония для анализа распределения температуры в качестве параметров топливных сердечников использованы данные табл. 5–7.

Предполагается, что теплопроводность в *rim*-слое в два раза меньше, чем в сердечнике тепловыделяющего элемента, а температура внешней стенки оболочки твэла  $T_w$  составляет 620 К ( $\approx 350$  °С).

Таблица 6

Расчетные параметры теплофизических характеристик твэла

$A$ , мм·К/Вт	$B$ , мм/Вт	$\lambda_1$ , Вт/мм·К	$\tilde{\lambda}_2$ , Вт/мм·К	$\lambda_2$ , Вт/мм·К	$T_w$ , К
43,8	0,2294	$3 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-3}$	$22,0 \cdot 10^{-3}$	620

Таблица 7

Параметры в зависимости от выгорания топлива

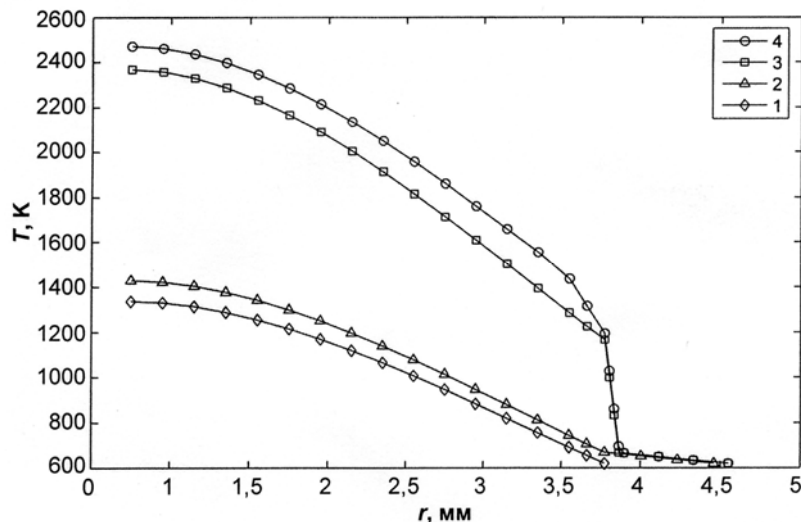
Выгорание, ГВт·сут/т U	0	60	80	100	120
Толщина оболочки, мкм	685	670	665	660	655
Толщина слоя ZrO <sub>2</sub> , мкм	0	16,8	22,4	28,0	33,6
Толщина <i>rim</i> -слоя, мкм	0	100	150	200	250
Зазор топливо-оболочка, мкм	100	98,2	97,6	97,0	96,4

Для примера некоторые термические режимы распределений температуры в топливном сердечнике представлены на рис. 14 для мощности источника  $q_L = 400$  Вт/см.

Кривая 4 на рис. 14 соответствует термическому режиму в твэле с выгоранием 120 ГВт·сут/тU. В этом случае можно видеть, что температура топливного сердечника гораздо выше, чем в предыдущих случаях. Сравнение температуры в данном случае с температурой плавления топлива показывает, что имеет место опасное повышение температуры, поскольку возможно плавление топлива из-за снижения его  $T_{пл}$  в результате растворения в мат-

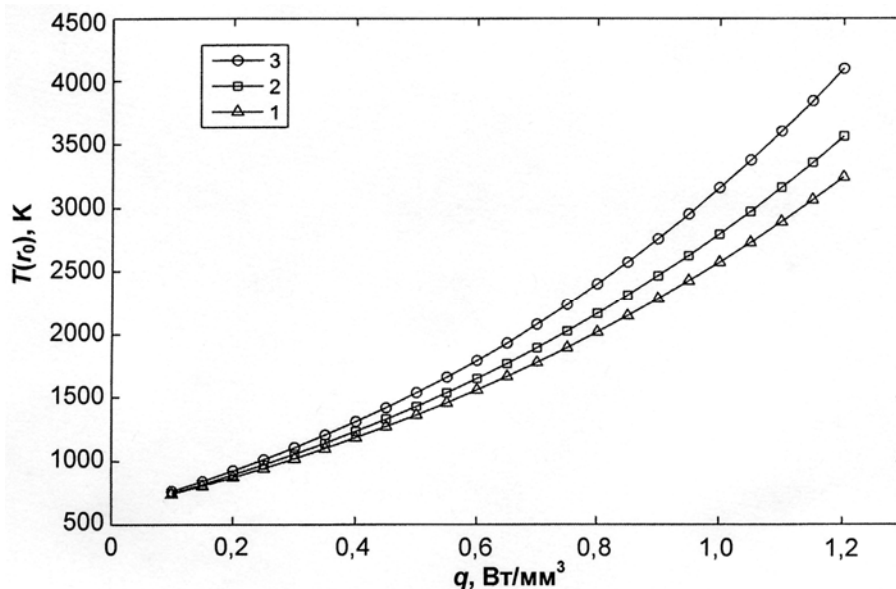
рице продуктов деления и выгорающего поглотителя. Этот факт свидетельствует, что в случае увеличения толщины *rim*-слоя необходимо снижать линейную мощность.

Рис. 14. Зависимость температуры от радиуса при  $q_L = 400$  Вт/см для случаев:  
 1 – зазор и оболочка отсутствуют;  
 2 – зазор отсутствует;  
 3 –  $B = 0$ ;  
 4 –  $B = 120$  ГВт·сут/т U



Зависимость температуры от источника  $q$  в точке  $r = r_0$  топливной таблетки представлено на рис. 15 для различных значений глубины выгорания топлива.

Рис. 15. Зависимость температуры в точке  $r = r_0$  от линейной мощности топливного сердечника ( $q_1 = 2q$ ) при различных выгораниях:  
 1 –  $B = 0$ ;  
 2 –  $B = 60$  ГВт·сут/т U;  
 3 –  $B = 120$  ГВт·сут/т U



Таким образом, из представленных результатов можно видеть, как следует регулировать мощность топливного сердечника, чтобы поддерживать штатный режим работы твэла. Образование *rim*-слоя снижает теплопроводность сердечника. Поэтому необходимо снижать мощность в твэле ядерного реактора.

**Глава 4** посвящена вопросам термоэкстракция технологических газов из таблеток оксидного ядерного топлива. Одним из наиболее перспективных путей повышения эксплуатационных характеристик водо-водяных энергетических реакторов является дальнейшее совершенствование состава и структуры топливных таблеток. Введение в  $UO_2$  оксидов алюминия и кремния содействует удержанию в топливе ряда важнейших продуктов деления, таких как Cs, Ba, Sr и др., вследствие образования стабильных алюмосиликатов, например  $CsAlSi_2O_6$ . В то же время легирование  $UO_2$  оксидами некоторых элементов, например, Nb, V, Ti, Cr позволяет получать топливные таблетки с крупным размером зерна, которые имеют более низкую утечку газообразных продуктов деления и повышенную скорость ползучести при кислородном потенциале выше  $-300$  кДж/моль. Весьма важное значение имеет также добавление в топливо интегрированных с ним выгорающих поглотителей нейтронов, таких как  $Gd_2O_3$ , что улучшает безопасность ВВЭР, увеличивает загрузку в реактор топлива и по-

вышает глубину его выгорания. Решению перечисленных проблем служит модифицированное оксидное ядерное топливо (МОЯТ) на основе  $UO_2$  с выгорающим поглотителем нейтронов (5-8 мас. %  $Gd_2O_3$ ) и легирующими добавками оксидов Al, Si и Nb, суммарное содержание которых не превышает 0,4 мас. %.

Показано, что набухание таблеток  $UO_2$ ,  $UO_2-Nb_2O_5$ ,  $UO_2-TiO_2$  и  $UO_2-Gd_2O_3$  зависит от микроструктуры и количества добавок и обратно пропорционально размеру зерна. Кроме того, путем моделирования набухания топливных таблеток за счет выделения менее 50 ppm (млн<sup>-1</sup>) растворенного в матрице углерода на границах зерен в виде CO и CO<sub>2</sub> в межгранульных пузырьках набухание может достигать 10 %. По ТУ951823-95Е содержание углерода в топливных таблетках регламентируется в пределах  $(100 \pm 20)$  ppm. Поэтому крайне важным является детальное изучение процесса выделения углерода наряду с выделением газообразных продуктов деления (ГПД) и возможных при этом последствий.

Несмотря на важную роль легирующих добавок в улучшении характеристик топливных таблеток, свойства легированного топлива изучены недостаточно полно.

Нами выполнены опытно-конструкторские и научно-исследовательские работы по созданию методики определения общего содержания технологического газа в спеченных топливных таблетках из  $UO_2$  методом вакуумной экстракции при температуре 1873 К. Необходимость их проведения обусловлена тем, что технологические газы, выделяясь из таблеток в процессе выгорания топлива, снижают теплопроводность зазора сердечник-оболочка, усиливают водородное охрупчивание оболочки твэла, вызывают ее науглероживание и транспортные процессы в топливе, а также повышают газовое набухание при высоких выгораниях. Кроме того, для уменьшения окисления оболочки твэла величина кислородного потенциала топливных таблеток должна находиться в довольно узком интервале, например, при 700 К от -300 до -460 кДж/моль. Это требование существенно ограничивает величину отношения O/M ( $M = U + Pu$ ) смешанного ядерного топлива на основе  $UO_2$ . Проведенные нами исследования газовой выделенности из таблеток  $UO_2$ , содержащих добавки оксидов Ce, Gd, Nb и др., показали резкое увеличение в выделяющихся технологических газах концентрации CO и CO<sub>2</sub>, которое может возрастать по мере выгорания топлива. Поскольку газовыделение под оболочку твэла – одна из важнейших характеристик топлива с точки зрения обеспечения безопасности его эксплуатации, особенно при достижении глубоких выгораний, это свидетельствует о необходимости более детального исследования процесса газовой выделенности из таблеток как уран-плутониевого оксидного топлива ( $U_{0,8}Pu_{0,2}O_{2-x}$ ), так и МОЯТ, в котором наряду с 5-8 мас. % выгорающего поглотителя  $Gd_2O_3$  будут накапливаться растворимые продукты деления (PЗЭ, Zr, Ti и др.) и актиноиды, причем в краевой зоне в 2-3 раза быстрее, чем в среднем по радиусу сердечника, в результате чего их суммарное количество может достигать 12-15 мас. % при среднем выгорании 80 ГВт·сут/т U.

Измерение небольших количеств газа (менее 50 мм<sup>3</sup>/г топлива) с высокой точностью представляет довольно сложную задачу. В разработках ASTM (С-776 и С-696) рекомендуется использовать метод термической экстракции путем нагрева топливных таблеток до 1873 К в вакууме. При температуре 800-900 К из таблеток выделяется влага, а при 1873 К в течение 10-15 мин выделяются технологические газы H<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> и др. Затем газы собирают с помощью сорбента или компрессора и анализируют методом газохроматографии или определяют давление компрессионным манометром Мак-Леода. Оба эти метода имеют существенные недостатки, главными из которых являются: неполное поглощение между измеряемыми газами и теми, которые поступают в установку вследствие натекания; большая длительность анализа за счет подготовительных операций; использование больших количеств ртути, что крайне опасно.

Учитывая вышеизложенное, нами была разработана установка для определения газовой выделенности из топливных таблеток (ГТТ) путем термоэкстракции в вакууме при 1873 К и одновременным измерением давления в аналитическом объеме за фиксированный промежуток времени с помощью датчика абсолютного давления.

Таблетки диоксида урана без добавок (партии В, Р) и легированного небольшими добавками  $Nb_2O_5$ ,  $3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$  и  $F_2O_3$ , полученные путем высокотемпературного спекания

свежеспрессованных образцов (~ 50 % ТП) в водороде, содержат как в свободном, так и в связанном состояниях газы и газообразующие примеси Н, С, N.

Состав легированных образцов:

1 –  $UO_2 + 0,06$  мас.%  $Nb_2O_5 + 0,15$  мас.%  $(3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2)$ ;

2 -  $UO_2 + 0,10$  мас.%  $Nb_2O_5 + 0,25$  мас.%  $(3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2)$ ;

3 -  $UO_2 + 0,20$  мас.%  $Nb_2O_3 + 0,1$  мас.%  $\alpha-Fe_2O_3$ .

Удельное содержание технологических газов, экстрагированных из штатных, реперных и легированных образцов диоксида урана (табл. 8) увеличивается от 3,69 до 15,45 мм<sup>3</sup>/г в основном за счет роста количества СО.

Для получения зависимости газовой выделенности от радиального градиента кислородного потенциала были изготовлены таблетки без добавок (Р) и составов 2 и 3 в виде втулок с различной толщиной стенки. Обозначения партий: Р – реперные; М – муллит +  $Nb_2O_5$ ; С – железный сурик +  $Nb_2O_5$ ; Н – нормальная толщина стенки (3,08 мм), Т – тонкая стенка втулки (1,55 мм).

В табл. 9 приведены удельное содержание  $n_{общ}$ ,  $n_{H_2}$ ,  $n_{H_2O}$ ,  $n_{CO}$ ,  $n_{CO_2}$ , а также  $\Delta \bar{G}_{O_2}$  и  $O/(U+Nb)$  таблеток  $UO_2$ ,  $U_{1-y}Nb_yO_{2+x}$  + *эвт.* ОХ(U, Al, Si) или *эвт.* ОХ(U, Fe), из которых следует, что газовыделение для партий Р и М практически не зависит от толщины стенки втулки и хорошо согласуется с полученной зависимостью  $n_{общ} = 2,25 \sqrt{t}$ , а для партии СТ наблюдается сильная зависимость скорости выделения на промежуточной стадии и  $n_{общ}$  от толщины стенки втулки.

Таблица 8

Удельное содержание технологических газов  $n_{общ}$ , водорода  $n_{H_2}$ , воды  $n_{H_2O}$ , оксида углерода  $n_{CO}$ , диоксида углерода  $n_{CO_2}$ , величина кислородного потенциала  $\Delta \bar{G}_{O_2}$  и  $p_{O_2}$  при 1873 К в таблетках  $UO_2$  без добавок (партии В, Р) и таблетках  $UO_2$  с легирующими добавками (партии 1, 2, 3)

№ партии	$\rho$ , г/см <sup>3</sup>	$V_{пор}$ , мм <sup>3</sup> /г	Сод. С, мкг/г	$n_i$ , мм <sup>3</sup> /г					$\Delta \bar{G}_{O_2}$ , кДж/моль при 1873 К	$p_{O_2}$ , 10 <sup>-12</sup> атм.
				Общ.	H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	CO	CO <sub>2</sub>		
В	10,58	3,28	100	3,69	3,25	0,18	0,25	0,01	-351	163
Р	10,69	2,30	130	8,74	3,44	0,21	4,98	0,11	-350	171
1	10,52	3,84	80	15,45	5,22	0,35	9,79	0,09	-387	16
2	10,57	3,36	80	10,98	3,58	0,36	6,97	0,07	-390	48
3	10,72	2,03	80	15,01	3,30	0,20	11,39	0,12	-400	7

Таблица 9

Удельное содержание технологических газов  $n_{общ}$ ,  $n_{H_2}$ ,  $n_{H_2O}$ ,  $n_{CO}$ ,  $n_{CO_2}$ , значения  $P_{O_2}$  и  $\Delta \bar{G}_{O_2}$  в спеченных образцах  $UO_2$ ,  $U_{0,998}Nb_{0,002}O_2$  + *эвтектика* ОХ(U, Al, Si) и  $U_{0,996}Nb_{0,004}O_2$  + *эвтектика* ОХ(U, Fe)

№ образца	$\rho$ , г/см <sup>3</sup>	$V_{пор}$ , мм <sup>3</sup> /г	$n_i$ , мм <sup>3</sup> /г					$p_{O_2}$ , 10 <sup>-9</sup> атм.	$\Delta \bar{G}_{O_2}$ , кДж/моль
			Общ.	H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	CO	CO <sub>2</sub>		
РН*	10,52	3,79	5,3	0,4	0,3	3,9	0,6	5,5	-295
РТ*	10,57	3,41	6,0	0,5	0,3	4,1	1,0	7,9	-290
МН*	10,15	7,30	5,7	0,5	0,4	4,0	0,7	6,8	-292
МТ*	10,51	3,97	6,2	0,7	0,4	4,6	0,6	5,1	-298
СН*	10,55	3,61	9,9	0,6	0,3	8,0	1,0	3,0	-306
СТ*	10,53	3,75	28,2	1,0	0,7	24,2	2,8	2,0	-308

\* Средние значения.

Количество технологических газов, экстрагированных из реперных и легированных образцов диоксида урана при 1873 К в вакууме в течение 30 мин составило для РН и РТ 5,3 мм<sup>3</sup>/г и 6,0 мм<sup>3</sup>/г соответственно, для МН и МТ – 5,7 мм<sup>3</sup>/г и 6,2 мм<sup>3</sup>/г, а из образцов СН и СТ – 9,9 мм<sup>3</sup>/г и 28,2 мм<sup>3</sup>/г, причем содержание Н<sub>2</sub> во всех партиях примерно одинаково (от 0,4 до 1,0 мм<sup>3</sup>/г).

Для расчета градиента отношения О/М по глубине таблетки были сняты профили рентгеновских линий (533) и (622) и определены дополнительно значения параметра решетки *a* исследованных образцов в стадии поставки вначале на торцевой поверхности втулки, а затем - после снятия слоя толщиной 300 мкм. Полученные значения *a* представлены в табл. 10.

Используя измеренные на разном расстоянии от поверхности экспериментальные значения параметра решетки *a<sub>i</sub>* образцов U<sub>1-y</sub>Nb<sub>y</sub>O<sub>2+x</sub> (y=0, 0,002, 0,004), были рассчитаны для них степени отклонения от стехиометрии *x<sub>i</sub>*, из которых следует, что во всех образцах партий Р, М и С имеется градиент содержания кислорода, направленный к поверхности (*x<sub>1</sub>*=0,0015; 0,0037 и 0,0086) из глубины образцов (*x<sub>2</sub>*=0,0001; – 0,0014 и – 0,0016 соответственно).

Таблица 10

Экспериментальные значения параметра решетки *a* образцов U<sub>1-y</sub>Nb<sub>y</sub>O<sub>2+x</sub> партий РН, МН, СН и рассчитанные по величине *a* отклонение от стехиометрии *x<sub>i</sub>* = *f*(*a*, *y*) и градиент кислорода 4(*x<sub>1</sub>*–*x<sub>2</sub>*)/(*D*–*d*)

Партия	Состав	Параметр решетки <i>a</i> , пм			Величина нестехиометрии, <i>x<sub>i</sub></i>			$\frac{4(x_1 - x_2)}{(D - d)}$ , ед. О/М/мм	
		1	2	3	1	2	3		
Р	UO <sub>2+x</sub> без добавок	547,00	547,07	547,01	0,0015	0,0001	0,0013	0,0009	РН
		±0,05	±0,05	±0,05				0,0018	РТ
М	U <sub>1-y</sub> Nb <sub>y</sub> O <sub>2+x</sub> + эвтектика ОХ(U,Al,Si)	546,86	547,11	547,04	0,0037	–0,0014	0,0013	0,0032	МН
		±0,05	±0,05	±0,05				0,0064	МТ
С	U <sub>1-y</sub> Nb <sub>y</sub> O <sub>2+x</sub> + эвтектика ОХ(U,Fe)	546,60	547,10	546,90	0,0086	–0,0016	0,0025	0,0066	СН
		±0,05	±0,05	±0,05				0,0132	СТ

Примечание: 1 – поверхностный слой в стадии поставки; 2 – после снятия слоя толщиной δ = 300 мкм; 3 – поверхностный слой после термоэкстракции.

На экспериментальной установке ГТТ методом высокотемпературной термоэкстракции при 1873 К были также проведены измерения кинетики газовой выделения из спеченных образцов модельного МОХ-топлива U<sub>1-y</sub>Se<sub>y</sub>O<sub>2+x</sub>, которые содержали от 0 до 25 мас.% оксида церия. Последний является химическим аналогом плутония, и поэтому кинетику выделения технологических газов из таблеток (U, Pu)O<sub>2</sub> можно предварительно изучить на модельных образцах (U, Се)O<sub>2</sub> без использования специальных защитных боксов. Кроме того, СеО<sub>2</sub> может служить нейтральным разбавителем при использовании в качестве ядерного топлива высокообогащенных оксидов урана или плутония, вследствие чего исследование газовой выделения из таблеток (U, Се)O<sub>2</sub> имеет самостоятельное значение.

Концентрационная зависимость удельного газовой выделения *n*<sub>общ</sub>, *n*<sub>Н<sub>2</sub></sub>, *n*<sub>Н<sub>2</sub>О</sub>, *n*<sub>СО</sub>, *n*<sub>СО<sub>2</sub></sub> при длительности хранения от 2 до 54 недель представлена на рис. 16.

Анализ полученных результатов зависимости газовой выделения из образцов U<sub>1-y</sub>Se<sub>y</sub>O<sub>2-x</sub> от содержания Се и величины Δ*G*<sub>O<sub>2</sub></sub> показывает, что максимальные измеренные значения *n*<sub>общ</sub> достигают 125 мм<sup>3</sup>/г UO<sub>2</sub>, а предельные могут доходить до 160–200 мм<sup>3</sup>/г UO<sub>2</sub> при условии наличия градиента кислородного потенциала между поверхностью образца и

его внутренней частью. Это необходимое условие для диффузии кислорода и образования CO и CO<sub>2</sub>.

Коэффициенты диффузии кислорода  $\tilde{D}_O$  в образцах (U, Ce)O<sub>2-x</sub> и UO<sub>2+x</sub> были измерены в интервале 1000–1600 К с помощью устройства, включающего твердоэлектrolитную гальваническую ячейку, обладающую кислородной проводимостью, пропусканием постоянного тока через ячейку и измерения эдс в зависимости от времени. Величина  $\tilde{D}_O$  для образцов U<sub>0,718</sub>Ce<sub>0,282</sub>O<sub>1,998</sub> и UO<sub>2,001</sub> при 1600 К составила соответственно  $1,5 \cdot 10^{-9}$  и  $3,2 \cdot 10^{-10}$  м<sup>2</sup>/с. Полученные результаты удовлетворительно согласуются с литературными данными, в которых для U<sub>1-y</sub>Ce<sub>y</sub>O<sub>2-x</sub> при 1873 К получено значение  $3,87 \cdot 10^{-8}$  м<sup>2</sup>/с, а для UO<sub>2</sub>  $\tilde{D}_O$  не превышал  $4,7 \cdot 10^{-9}$  м<sup>2</sup>/с. По-видимому, такое различие в величине  $\tilde{D}_O$  для образцов (U, Ce)O<sub>2</sub> и UO<sub>2</sub> является основной причиной столь существенного увеличения газовой выделению из образцов оксидного ядерного топлива на основе UO<sub>2</sub> при наличии в них растворенных атомов имитаторов ПД, плутония или пластифицирующих добавок оксидов Nb, Cr, Ti и др.

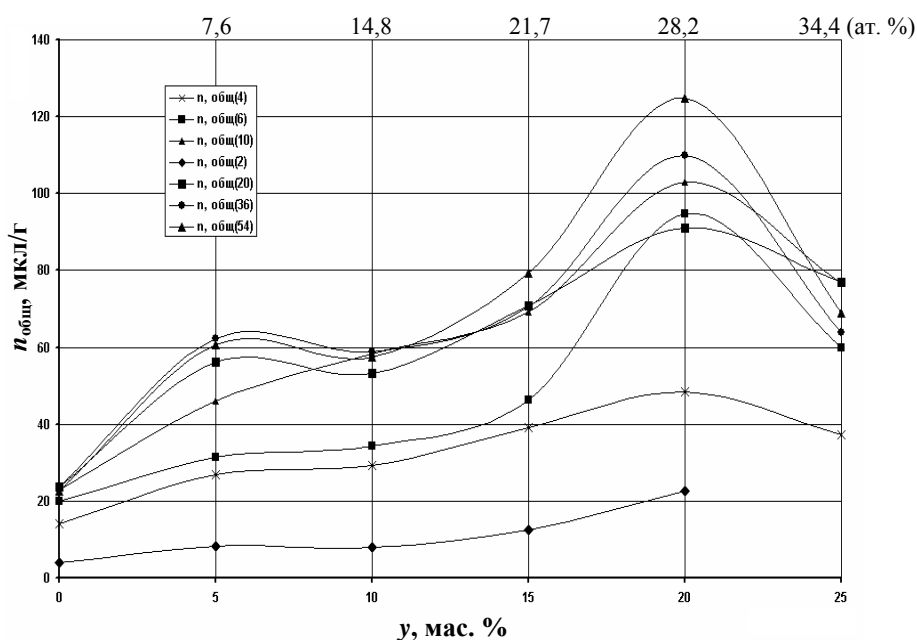


Рис. 16. Концентрационная зависимость удельного газовыделения  $n_{\text{общ}}$  из образцов U<sub>1-y</sub>Ce<sub>y</sub>O<sub>2-x</sub> при длительности хранения от 2 до 54 недель после спекания

Полученные результаты по газовыделению свидетельствуют о том, что количество термоэкстрагированных газов из образцов (U, Ce)O<sub>2</sub> зависит от пористости таблеток, содержания в них оксида церия, а также степени нестехиометрии. При этом содержание в них (H<sub>2</sub> + H<sub>2</sub>O) изменяется в довольно узком интервале (от 1 до 3 мм<sup>3</sup>/г), а количество CO + CO<sub>2</sub> достигает значений от 20 до 120 мм<sup>3</sup>/г, причем общее удельное газовыделение изменяется от 20 мм<sup>3</sup>/г (y = 0) до 125 мм<sup>3</sup>/г (y = 0,282).

При охлаждении после спекания при 1873 К образцов (U, Nb)O<sub>2</sub> и (U, Ce)O<sub>2</sub> в водороде, содержащем пары воды, изменение величины отношения таблеток O/(U+Nb) и O/(U+Ce) с уменьшением температуры происходит быстрее, чем понижение кислородного потенциала газовой среды. Это следует из результатов послойного рентгенографического анализа. Вследствие этого приповерхностные слои образца становятся более окисленными относительно его внутренней области, что создает из-за высокой диффузионной подвижности кислорода градиент O/M, направленный к поверхности из глубины образца. Используя результаты послойного рентгенографического анализа был определен градиент O/M для всех исследованных образцов.

На основании полученных результатов можно сделать вывод о том, что появление градиента кислорода в образцах в процессе их охлаждения после спекания при температуре

$T_{\text{сп}}$  приводит к возникновению диффузионного потока кислорода от поверхности в глубину образца, а примесные атомы углерода, растворенные в матрице  $\text{UO}_2$ ,  $(\text{U}, \text{Nb})\text{O}_2$  или  $(\text{U}, \text{Ce})\text{O}_2$  диффундируют из решетки к поверхности таблетки или поры по градиенту кислородного потенциала. В результате реакции углерода с кислородом образуются газы  $\text{CO}$  и  $\text{CO}_2$ . Проведенные послойные измерения периода решетки образцов оксидного ядерного топлива, полученных путем спекания при 1873 К в аргоноводородной среде,  $\text{UO}_{2+x}$ ,  $(\text{U}, \text{Nb})\text{O}_{2+x}$  и  $(\text{U}, \text{Ce})\text{O}_2$  показали, что у всех образцов приповерхностный слой имеет величину отношения О/М больше, чем на глубине, превышающей 50–100 мкм.

Следовательно, в таблетках оксидного ядерного топлива на основе  $\text{UO}_2$  после их спекания всегда имеется градиент кислорода, направленный к поверхности из глубины таблетки. При термической экстракции технологических газов из топливных таблеток количество выделившихся из нее  $\text{CO}$  и  $\text{CO}_2$  зависит как от пористости, содержания добавок, так и от величины кислородного потенциала таблетки и градиента О/М. Поскольку в исходном порошке  $\text{UO}_2$  всегда имеется углерод, количества которого достаточно для образования 150–200 мкл ( $\text{CO}+\text{CO}_2$ ) на 1 г  $\text{UO}_2$ , то это в 3–4 раза превышает предельно допустимую норму газовой выделенности, равную 50 мкл/г.

Для снижения выделения  $\text{CO}$  и  $\text{CO}_2$  при высоких выгораниях можно использовать метод связывания растворенного в  $\text{UO}_2$  углерода в устойчивые соединения, например, карбид молибдена.

На основании анализа полученных результатов газовой выделенности предложена модель физико-химических и диффузионных процессов при термоэкстракции технологического газа из спеченных образцов диоксида урана.

## ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. Впервые предложена математическая модель постановки эксперимента по точному определению теплофизических свойств диоксида урана с учетом тепловых потерь, которая воспроизводит экспериментальные кривые нагрева на поверхности образца с заданной точностью. В частном случае (задача без охлаждения за счет инфракрасного излучения) математическая модель допускает точное решение.

2. Сформулированы математические модели тепловых процессов в твэле с оксидным ядерным топливом при глубоких выгораниях и *впервые* получены аналитические решения задач теплопередачи (в стационарном и нестационарном приближениях) в радиальном направлении в твэле, показана степень снижения теплопроводности вследствие образования и роста толщины *rim*-слоя, окисления циркониевой оболочки, изменения размера зазора между топливом и оболочкой.

3. На основе анализа факторов формирования краевой зоны на поверхности таблеток при больших выгораниях топлива впервые разработана методика повышения выгорания до начала образования краевой зоны путем использования комбинированного топливного сердечника, центральная часть которого имеет повышенную концентрацию делящегося изотопа, а тонкая периферийная зона (толщиной 50–200 мкм) состоит из природного или обедненного урана, что позволяет улучшить экономику топливного цикла.

4. Показано, что отклонение от стехиометрии, увеличение пористости, содержания продуктов деления, выгорающего поглотителя ( $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ) приводят к уменьшению коэффициента теплопроводности диоксида урана.

5. Разработана методика учета тепловых потерь при измерении теплопроводности образцов на основе  $\text{UO}_2$  импульсным методом.

6. С помощью математического моделирования установлено, что при заданных теплофизических характеристиках твэла время установления стационарного распределения температуры, как правило, не превышает одной минуты. Поэтому при определении температурных режимов в твэле можно с хорошей точностью использовать полученные решения стационарных задач.

7. На основе анализа структурно-фазового состояния сложных по составу оксидов модельного и модифицированного оксидного ядерного топлива установлено, что введенные в



UO<sub>2</sub> оксиды Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> образуют стекловидную тройную эвтектику типа UO<sub>2</sub>+Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+SiO<sub>2</sub> или UO<sub>2</sub>+Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, а оксиды Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CeO<sub>2</sub> образуют с UO<sub>2</sub> твердые растворы.

8. На основе изучения структуры сложнолегированных оксидов урана показано, что во всех легированных образцах формируется градиент концентрации кислорода от центра к поверхности таблеток, наличие которого является причиной образования значительного количества газов СО и СО<sub>2</sub> в закрытых порах, и может усиливать газовое распухание таблеток при облучении.

9. Наличие градиента кислородного потенциала, растворенных продуктов деления и актиноидов в модельном оксиде типа (U, Ce)O<sub>2+x</sub> приводят к существенному усилению выделения технологических газов (СО и СО<sub>2</sub>), что следует учитывать при внедрении нового модифицированного ядерного топлива и увеличении глубины выгорания топлива.

## СНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Баранов В.Г., Тенишев А.В., Хлунов А.В. Газовыделение из таблеток модельного оксидного топлива на основе урана. – Перспективные материалы, 2008, №6, с. 39–44.
2. Баранов В.Г., Терновых М.Ю., Тихомиров Г.В., Хлунов А.В. Моделирование ядерно-физических процессов в поверхностном слое топливного сердечника с выгорающим поглотителем. – Атомная энергия, 2008, т. 105, вып.6, с. 307–311.
3. Андрианов А.Н., Баранов В.Г., Тихомиров Г.В., Хлунов А.В. Моделирование ядерно-физических процессов в поверхностном слое топливного сердечника. – Атомная энергия, 2008, т. 104, вып. 6, с. 353–358.
4. Баранов В.Г., Годин Ю.Г., Хлунов А.В. Способ определения коэффициента диффузии кислорода в металлах и окислах / Авт. св-во СССР № 911292, Б.И. №9, 1982.
5. Баранов В.Г., Годин Ю.Г., Хлунов А.В. Устройство для измерения коэффициента диффузии кислорода в металлах и окислах / Авт. св-во СССР № 966581, Б.И. № 38, 1982.
6. Баранов В.Г., Девятко Ю.Н., Тенишев А.В., Хлунов А.В., Хомяков О.В. Полуэмпирический метод определения температурной зависимости коэффициента теплопроводности диоксида урана. – В сб.: Труды отраслевого научного семинара «Физика радиац. поврежд. материалов атомной техники, ГНЦ РФ-ФЭИ, Россия, Московская обл., г. Обнинск, 21 – 23 апреля 2009 г.
7. Баранов В.Г., Нечаев В.В., Хлунов А.В. Термоэкстракция технологического газа из легированного диоксида урана. – В сб.: Труды отраслевого научного семинара «Физическое моделирование изменения свойств реакторных материалов в номинальных и аварийных режимах», г. Димитровград, ОАО «ГНЦ НИИАР» 19–21 мая 2009 г.
8. Баранов В.Г., Кудряшов Н.А., Хлунов А.В., Чмыхов М.А. Стационарное распределение температуры в твэле ВВЭР при глубоком выгорании. – В сб.: Труды IX Российской конф. по реакторному материаловедению, г. Димитровград, ОАО «ГНЦ НИИАР», 14–18 сентября 2009 г., с. 35–38.
9. Баранов В.Г., Тенишев А.В., Хлунов А.В. Модельные представления о физико-химических и диффузионных процессах при термоэкстракции технологического газа из легированного диоксида урана. – Атомная энергия, 2009, т. 107, вып. 3, с. 91–98.
10. Kudryashov N.A., Khlunov A.V., Chmykhov M.A. Temperature distribution in nuclear fuel rod at high burn up». – In: Abstracts of the Intern. Conf. Mathematical Modeling and Computational Physics, Dubna, Russia, July 7–11 July, 2009, p. 59–60.
11. Kudryashov N.A., Khlunov A.V., Chmykhov M.A. Thermal regimes of high burn-up nuclear fuel rod». – Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulations, Accepted 28 May 2009.

12. Баранов. В.Г., Девятко Ю.Н., Тенишев А.В., Хлунов А.В. Хомяков О.В. Новый метод определения температурной зависимости коэффициента теплопроводности диэлектриков в импульсном эксперименте. – Перспективные материалы, 2009, № 4, с. 91–98.