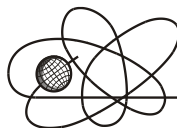




*Российская Академия Наук*

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ИНСТИТУТ ПРОБЛЕМ  
БЕЗОПАСНОГО РАЗВИТИЯ  
АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ**



**ИБРАЭ**

RUSSIAN ACADEMY OF SCIENCES

**NUCLEAR SAFETY  
INSTITUTE**

Препринт ИБРАЭ № ИВРАЕ-1997-11

Preprint IBRAE-1997-11

**Д.В.Петрайтис**

**ПРИБЛИЖЕННЫЙ АНАЛИЗ УСТОЙЧИВОСТИ  
НАДЗЕМНОГО МАГИСТРАЛЬНОГО  
ТРУБОПРОВОДА**

Москва 1997

Moscow 1997

УДК 622.692

Петрайтис Д.В. ПРИБЛИЖЕННЫЙ АНАЛИЗ УСТОЙЧИВОСТИ НАДЗЕМНОГО МАГИСТРАЛЬНОГО ТРУБОПРОВОДА. Препринт № IBRAE-97-11. Москва. Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН. 1997. 18 с. — Библиогр.: 25 назв.

Аннотация

В данной работе представлена математическая модель колебательной динамики надземного магистрального трубопровода после разрыва. Модель основана на балочном приближении. Она позволяет связать технические и физические параметры трубопровода и потока с расстоянием между неподвижными опорами, гарантирующими устойчивость.

©ИБРАЭ РАН, 1997

Petraitis D.V. THE APPROXIMATE ANALYSIS OF THE ABOVE-GROUND PIPELINE STABILITY. Preprint IBRAE-97-11. Moscow. Nuclear Safety Institute. June 1997. 18 p. — Refs.: 25 items.

Abstract

Presented in this paper is a mathematical model of vibrating dynamics of the ruptured above-ground pipeline. This model is based on the joist approximation. It allows to correlate technical and physical parameters of the pipeline and pipe flux with the distance between the immovable supporters that guarantees stability.

©Nuclear Safety Institute, 1997

# Поведение облученного топлива при быстропротекающих авариях

*В.В.Лиханский, Л.В.Матвеев*

ИНСТИТУТ ПРОБЛЕМ БЕЗОПАСНОГО РАЗВИТИЯ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ  
113191 Москва, ул. Б.Тульская, 52  
тел.:(095) 334-06-81, факс: (095)230-2029, E-mail: likhansk@fly.triniti.troitsk.ru

## 1 Введение

Одной из важных физических задач, встающих при анализе безопасности атомных реакторов, является моделирование поведения топлива в ходе быстропротекающих аварий. Под быстропротекающими понимаются такие аварии, когда скорость разогрева активной зоны превышает 100 К/сек. Подобные скорости нарастания температуры топлива могут реализоваться при реактивных авариях. В зависимости от характерных особенностей процесса, таких как степень и условия выгорания топлива, скорость нагрева и теплоотвода, взаимодействие с оболочкой ТВЭЛ, механизмы релаксации топлива, находящегося в сильнонеравновесном состоянии, могут оказаться существенно различными. Например, быстрый разогрев приведет к тому, что релаксация сильно неравновесной системы - "продукты деления в топливной матрице" - будет происходить не обычным способом за счет диффузии атомов и вакансий, а путем растрескивания матрицы. Растрескивание может существенно ускорять выход продуктов деления и изменять состояние и свойства топлива.

В связи с этим в 70-х годах начались активные экспериментальные исследования поведения топлива при высокоскоростных нагревах. Соответствующие энергоклады достигались либо за счет прямого электрического нагрева топлива, либо образцы испытывались в исследовательских реакторах, более адекватно моделирующих реальные условия аварии.

В данной работе рассмотрены эксперименты и теоретические модели, имеющие отношение к вопросу механического поведения топлива.

В разделе 2 сделан обзор экспериментальных исследований по быстрому нагреву топлива и кратко рассмотрены имеющиеся теоретические модели. В пункте 2.1 приведен анализ экспериментов по изучению поведения выгоревшего топлива бридерных реакторов при нагреве электрическим током [1]. Здесь же кратко описана теоретическая модель, развитая в [2] на основании результатов этих экспериментов. Представлен критерий, определяющий как соотносятся между собой вязкая и хрупкая моды релаксации напряжений от температуры, скорости нагрева и микропараметров топлива. В пункте 2.2 рассмотрено поведение бридерного топлива при нагреве в импульсном исследовательском реакторе [3]. В пунктах 2.3 и 2.4 приведены экспериментальные результаты исследования нагрева образцов выгоревшего топлива легководных реакторов в условиях облучения. В пункте 2.5 рассмотрены результаты работы [4] по исследованию микроструктуры LWR топлива, играющей важную роль при развитии той или иной моды релаксации при высокоскоростном нагреве. В разделе 3 представлена модель "хрупкой", а в разделе 4 - "вязкой" моды релаксации зернограничных пузырьков с газом. При построении моделей считалось, что как рост внутрипузырькового давления, так и ускорение релаксационных процессов определялись повышением температуры в топливной таблетке в отсутствие облучения. В Заключение перечислены основные выводы предложенных моделей.

## 2 Обзор исследований поведения выгоревшего топлива при высокоскоростном нагреве

### 2.1 Эксперименты по прямому электрическому нагреву LMFBR (liquid-metal fast breeder reactor) - топлива

В работе [1] для исследования брались образцы облученного топлива без оболочки и запаивались в кварцевую трубку. Размеры образцов составляли 5 мм в диаметре и 19 мм по высоте. Степень выгорания составляла 3,5 ат %. Проводилась серия экспериментов, в которых образцы предварительно нагревались путем пропускания тока и выдерживались при температуре работы реактора. Преднагрев длился 1÷2 минуты, так что температура топлива находилась в диапазоне 1300÷1500 °С. Затем следовал резкий импульсный нагрев, после чего ток отключался, и образец остывал. Параметры греющего импульса для двух характерных случаев указаны в таблице 1.

Таблица 1

Номер эксперимента	Длительность импульса	Суммарный энерговклад в течение импульса	Средняя скорость энерговклада
I-28	22,6 сек	571 Дж/г	25 Дж/г сек
I-29	4,4 сек	662 Дж/г	150 Дж/г сек

Для значения теплоемкости  $C \approx 0,45$  Дж/г в диапазоне температур  $T = 1500 \div 3000$  К скорости роста температуры составляют приблизительно 55 К/сек и 330 К/сек для I-28 и I-29, соответственно.

После остывания образцов проводилось их металлографическое исследование. Центральная часть таблетки в обоих случаях представляла закристаллизовавшийся расплав с большими пузырями, образовавшимися в результате выделения продуктов деления в жидком топливе. Переферийная часть оставалась в процессе нагрева нерасплавленной. Для образца I-28 в переферийной части таблетки наблюдалось интенсивное порообразование, так что суммарная внутризеренная и зернограничная пористость составляли 44%, со средним размером внутризеренных пузырей около 800 А. Для образца I-29 пористость была гораздо меньше ~ 18%, но наблюдалось “существенное разделение по границам зерен”.

В данных экспериментах проводилось исследование микроструктуры топлива до импульсного нагрева. Хотя количественные результаты в [1] не приводятся, но утверждается, что на границах зерен пузырей много и их функция распределения “широкая”, что находится в соответствии с более ранними результатами работы [5]. Серии других экспериментов работы [1], не указанные в таблице 1, никаких существенно новых результатов не содержат.

На основании результатов [1] в [2] была построена модель, где была предпринята попытка описать микрорастрескивание топлива при резком подъеме температуры. Основные положения этой модели состоят в следующем.

В квазистационарных условиях на границах зерен накапливаются пузырьки с газом, имеющие равновесную “линзовидную” форму, так что давление газа внутри пузырька уравнивается давлением поверхностного натяжения. При резком повышении температуры давление внутри пузырьков возрастает. Релаксация таких пересжатых пузырьков возможна либо за счет диффузионного массопереноса, либо за счет растрескивания матрицы вокруг пузырька. Ввиду того, что зернограничный коэффициент диффузии вакансий много больше объемного, приток вакансий происходит вдоль границ зерен. В случае увеличения объема пузыря за счет растрескивания матрицы, релаксация является неполной, поскольку форма пузыря не является равновесной. В связи с этим образуется дефицит объема, связанный с данной неравновесностью. Скорость роста дефицита объема  $(dV/dt)^-$  определяется скоростью роста температуры. При этом скорость роста реального объема незначительна. С другой стороны, диффузионный приток вакансий определяет скорость роста объема  $(dV/dt)^+$ . Сравнение  $(dV/dt)^-$  и  $(dV/dt)^+$  позволяет выписать критерий, определяющий какая мода релаксации пузырьков реализуется в каждый данный момент времени. Отметим, однако, что в модели никак не определяются условия начала растрескивания матрицы.

## 2.2 Изучение поведения облученного LMFBR топлива в исследовательских импульсных реакторах

В работе [3] исследовалось поведение выгоревшего LMFBR - топлива ( $UO_2-20\%PuO_2$ ) при быстром нагреве в импульсном реакторе. Образцы, которые брались для исследования (всего 9 штук) в процессе стационарной работы облучались до различных степеней выгорания и в различных условиях, характеризуемых разной скоростью энерговыклада. Для экспериментов вырезались куски стержней длиной 28 мм с оболочкой и подвергались импульсному нагреву в камере исследовательского реактора, заполненной гелием при давлении порядка одной атмосферы. В процессе испытаний температура поверхности образцов измерялась с помощью пирометров. В процессе нагрева поведение образца снималось на киноплёнку. Матрица экспериментальных данных приведена в таблице 2.

**Таблица 2**

№ эксперимента	Выгора-ние ат%	Номинал. лин. скор. нагр. Вт/см	Режим нагрева	Оболочка при разруш.	Энергия разруш. к номинал.	Скор нагр вблизи разруш К/с
2.6	5.3	283	A	нет	5-6	400
2.7	8.3	151	A	есть	4-5	400
2.8	8.3	151	B	есть	12-15	2000
4.0/2.5	Св.топ.	--	C	нет	12-14	2000
4.1	4.7	329	C	нет	12-14	2000
4.3	5.5	251	B	есть	14-17	4000
4.4	5.5	251	B	есть	14-17	
4.5	4.5	430	B	есть	14-17	4000

В третьем столбце указана номинальная мощность, при которой происходило стационарное выгорание топлива. В работе, к сожалению, не указан диаметр таблетки. В предположении, что диаметр таблетки составляет приблизительно 6 мм (характерный размер таблетки бриддерных реакторов), линейная скорость нагрева 100 Вт/см соответствует интенсивности делений  $1,2 \cdot 10^{13}$  дел/см<sup>3</sup>с. В шестом столбце указано отношение скорости нагрева в момент разрушения к номинальной скорости нагрева, указанной в столбце 3.

В четвертом столбце указано, в каком из трех режимов проводился нагрев:

A: Форма импульса мощности достаточно пологая, а величина импульса превышает номинальное значение мощности не более чем в пять раз. Преднагрев на уровне номинальной мощности достаточно длинный (в течение 8 секунд), так что к моменту начала импульса в зависимости от величины скорости нагрева оболочка может как оставаться на топливе (FD 2.7), так и стекать (FD 2.6).

B: Импульс мощнее и круче (см. таблицу), но преднагрев короче (4 сек.), так что к моменту начала импульса оболочка остается на топливе (“есть” в пятом столбце).

C: Тот же режим, что и в B, но преднагрев длиннее (9 сек.), так что оболочка стекает.

Пользуясь данными таблицы 2 и значением длительности импульсов, можно оценить величину полного энерговыклада за “быструю” часть аварии. Так для образца FD 2.6 (режим A) длительность импульса была порядка 1,5 сек. и полный энерговыклад составил приблизительно 840 Дж/г. Для FD 4.1 длительность ~0,5сек., энерговыклад ~900 Дж/г, а для FD 4.3, соответственно, 1сек и 1500Дж/г.

Результаты различных режимов нагрева были следующие:

В случае образца FD 2.6 после начала повышения мощности (через 0,1 сек) выход продуктов деления в пузыри во внутренней расплавленной части топлива (по расчетам к этому моменту расплавлялось 30% таблетки) приводил к сильному распуханию таблетки в целом с ее дальнейшим расплавлением. В результате конечный объем топлива был в 6-7 раз больше первоначального. В [3] данная мода разрушения названа “вспениванием”.

Для образцов FD 4.1 к моменту начала импульса энерговыклада оболочка уже была расплавлена и стекла. Распухание начиналось, когда ~83% топлива было уже расплавлено приблизительно через 80 мс после начала импульса. Сначала распухание происходило медленно, но через 70 мс резко ускорилось.

В случае FD 4.3 к моменту начала импульса оболочка не успевала стечь и разрушение топлива и стекание оболочки происходило одновременно. Разрушение таблеток состояло в том, что куски топлива отскакивали со скоростью сначала 10 м/с, а через несколько миллисекунд скорость отлетания уменьшалась до 2 м/с. Потом данный процесс прекращался и возобновлялся приблизительно через 30 мс. Через 100 мс после начала процесса оставшаяся часть топлива плавилась с одновременным вспениванием.

Модель, предложенная в этой работе и описывающая разрушение твердого топлива, состоит в следующем. В результате нагрева возрастает внутреннее давление пузырьков, находящихся на границах зерен. В случае раскалывания матрицы по границе зерна внутреннее давление этих пузырьков будет производить работу, которая должна быть больше работы, необходимой для образования поверхности раздела. В противном случае разрушения происходить не будет. В этом критерии никак не учитывается работа сил, связанных с упругими деформациями.

Также в данной работе [3] приводится обзор результатов предыдущих исследований [6], [7], на основании чего предлагается таблица механизмов разрушения топлива в зависимости от скорости нагрева:

**Таблица 3**

Скорость нагрева К/сек	10	100	1000 10000
Механизм разр. топл:			
Твердое состояние	Диффузия вакансий Пластическая ползучесть		Растрескивание по границам зерен
Жидкое состояние	Равновесие пузырьков и газов деления		

### 2.3 Исследования поведения LWR - топлива в условиях RIA- нагрева

В связи с проблемой повышения допустимой степени выгорания коммерческого LWR-топлива (с 30 MWd/kgU до 60 MWd/kgU) в последнее время проводятся активные исследования по изучению различных аспектов поведения выгоревшего топлива и, в частности его поведения в условиях RIA. Целью этих экспериментов являлось исследование топливных стержней в сборке (таблетка - оболочка) для установления критерия разрушения оболочки в зависимости от степени выгорания топлива, величины и скорости энерговыклада, а также характеристик оболочки [8], [9], [10].

В работе [9] приведены результаты импульсного облучения фрагментов выгоревших топливных LWR-стержней в CABRI - реакторе. Было проведено пять испытаний. Часть данных, характеризующих топливо и импульс нагрузки приведены в таблице 4. Нагрев проводился, начиная от комнатной температуры.

**Таблица 4**

	REP Na1	REP Na2	REP Na3	REP Na4	REP Na5
Выгорание MWd/kgU	63.8	33	52.8	62.3	64.3
Энерговкл. кал/г при 0.4с	110	211	120	95 (при 1.2с)	105
Ширина имп. (мс)	9.5	9.5	9.5	60	9
Выход газов (%)	---	5.5	13.4	not yet available	17.2
Толщина оксида на обол. (мкм)	80 сильное отшелушивание оксидного слоя	4	40	80	20
Разрушение оболочки	есть	нет	нет	нет	нет

Обычно, под разрушением стержня подразумевается нарушение сплошности оболочки. Разрушение оболочки в случае REP Na1 исследователи [9] связывают с сильным ее гидрированием в процессе стационарного облучения. При этом в экспериментах REP Na1 топливные таблетки остались неразрушенными. Ввиду того, что разрушение произошло рано (до окончания импульса нагрева),

основная нагрузка на оболочку, по мнению авторов [9], возникла в результате распухания топлива, связанного с быстрым нагревом и с выходом продуктов деления.

Следует также отметить, что в соответствии с данными таблицы 4 для импульсных нагревов длительностью  $\sim 10$  мс количество вылетевших газов деления растет со степенью выгорания. По всей видимости, выходит газ находившийся в зернограничных порах и накопившийся в процессе стационарной работы реактора. При импульсном нагреве в случае REP Na1, Na3, Na4, Na5 подъем температуры составлял приблизительно 1000К.

В работе [10] представлены результаты исследований импульсного нагрева выгоревшего топлива в реакторе NSRR. Были использованы фрагменты стержней разных типов (с разной степенью выгорания и скоростью энерговыделения в процессе стационарной работы реактора). Разрушение оболочки наблюдалось только в одном случае для стержня НВО-1. В таблице 5 приведены параметры, указанные в работе [10] для стержней этого типа.

**Таблица 5**

	НВО-1	НВО-2	НВО-3	НВО-4
Энерговклад кал/г	73	37	74	50
Ширина имп. (мс)	4.4	6.9	4.4	5.3
Толщ. оксида на обол. (мкм)	43	34	22	19
FGR (%)	---	18.5	21	22.5
Разрушение	есть	нет	нет	нет

Для всех стержней данного типа среднее по радиусу таблетки выгорание составляло 50,4 MWd/kgU. Начальная температура (температура до импульса) равнялась комнатной ( $\sim 20^{\circ}\text{C}$ ). Для образца НВО-1 наряду с разрушением оболочки стержня наблюдалась фрагментация топливных таблеток и выброс осколков из-под оболочки в исследовательскую капсулу. Размеры образовавшихся частиц были распределены следующим образом: около 50% осколков (по массе) представляли из себя частицы размерами  $< 50$  мкм, а 40% были  $< 500$  мкм. Во всех остальных случаях (НВО-2,3,4) таблетки оставались неразрушенными.

Момент разрушения оболочки наступал при вложенных энергиях порядка 60кал/г (при полном энергокладе  $\sim 73$  кал/г), что соответствует нагреву в 600К. Величина зазора между таблеткой и оболочкой перед импульсной нагрузкой была  $\sim 0,01$  мм.

Следует отметить, что, как указано в работе [11], использованные в [9], [10] параметры нагрузки при моделировании RIA могут оказаться несколько завышенными. Так, по мнению авторов [11], характерные величины энергокладов в процессе реактивных аварий составляют  $\sim 20$  кал/г для PWR и  $\sim 30$  кал/г для BWR с характерной длительностью импульса нагрузки  $\sim 80$ мс.

## **2.4 Исследование поведения ВВЭР топлива в условиях облучения импульсного реактора ИГР**

В [12] представлены результаты исследования импульсного облучения топливных стержней в реакторе ИГР (Казахстан). Целью данных исследований являлось определение пороговых значений энергокладов, при которых наблюдалось разрушение оболочек твэлов. Исследовались топливные стержни ВВЭР трех видов: 1) твэлы, содержащие выгоревшее (48MWd/kgU) топливо в облученной оболочке; 2) твэлы, состоящие из свежего топлива и облученной оболочки; 3) твэлы, составленные из свежего топлива и необлученной оболочки. Импульсное облучение проводилось в воде и в газовой атмосфере (в воздухе). Длительность импульса составляла 0,5-0,9 сек. Всего исследовалось 43 стержня.

Из результатов работы следует, что значения вложенной энергии, при которой наблюдалось разрушение оболочки, составляет  $\sim 135$ кал/г для облученных стержней и  $\sim 195$ кал/г для необлученных стержней при импульсном облучении в воде. Однако, имелся значительный разброс в энергиях, приводящих к разрушению. Так, в экспериментах с облученным топливом были стержни, которые остались неразрушенными при энергокладе 261кал/г, причины чего остались невыяснены. Характер разрушения оболочки зависел от энергоклада и вида топливных стержней. Из приведенных в [12] фотографий следует, что для топливных сборок типа 1) наблюдался ярко выраженный “баллунинг” (сильное распухание оболочки, связанное с пластическими деформациями), предшествовавший разрушению. К сожалению, о результатах измерений количества вышедших в процессе нагрева газов деления и исследования микроструктуры топлива в экспериментах [12] никаких данных не приводится.

## 2.5 Микроструктура выгоревшего топлива

Важным фактором, определяющим поведение топлива при высокоскоростном нагреве, является изменение его микроструктуры в процессе выгорания. Рассмотрим данные работы [4], касающиеся исследования микроструктуры выгоревшего LWR топлива.

С помощью электронного микроскопа, а также спектроскопическими методами исследовалось поведение продуктов деления в сильновыгоревшем ( 50 MWd/kgU ) диоксиде урана. В общем случае обнаружено, что газы Хе, Кг образуют сильнопересжатые включения размерами 20-100 нм как внутри зерен, так и на их границах. Исходя из измерений плотности газа внутри этих включений и из уравнения состояния инертных газов, в [13] делается вывод о том, что давление во включениях составляет ~ 1 ГПа. В этих условиях основная часть внутреннего давления удерживается не поверхностным натяжением  $2\gamma/r$ , которое для пузырей радиуса 20 нм составляет ~ 0,1 ГПа, а напряжениями упругих деформаций в матрице вокруг включений.

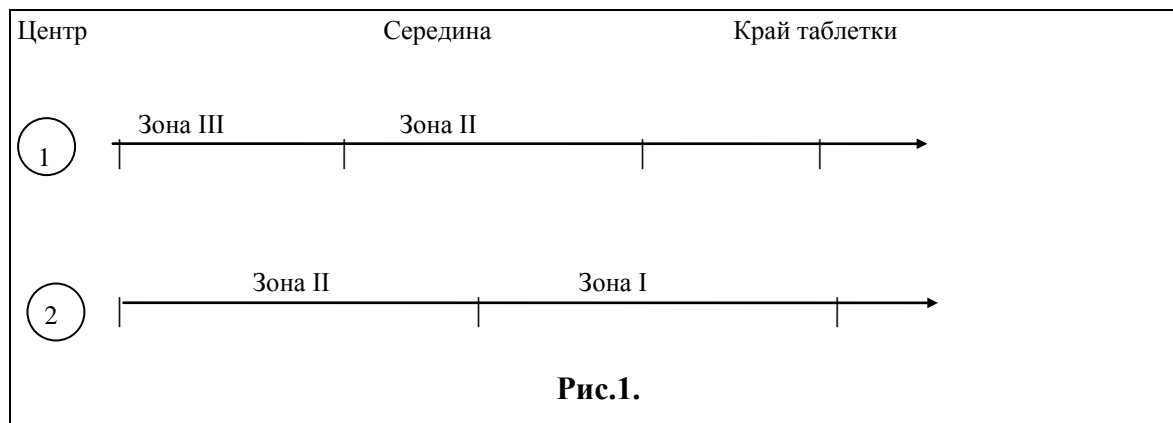
Подробно исследовались образцы топлива двух типов, облученные в процессе стационарной работы реактора. Характеристики экспериментов и образцов приведены в таблице 6.

**Таблица 6**

Тип топлива	Выгорание	Вылет продуктов деления	Обогащение	Линейная скорость нагрева	Размер зерна	Расчетная темпер. центра	Расчетная темпер. поверхн.
1	48	17,7%	2,45 wt%	20 KW/m	5мкм	1700 <sup>0</sup> C	500 <sup>0</sup> C
2	44,3	1,2%	3,04 wt%	20 KW/m	5мкм	900 <sup>0</sup> C	380 <sup>0</sup> C

При диаметре таблетки 1 см указанная линейная скорость нагрева приблизительно соответствует скорости делений  $10^{13} \text{ см}^{-3} \text{ с}^{-1}$ .

В работе [4] показано, что в этих двух случаях можно выделить три зоны, не считая rim region, характеризующиеся следующими параметрами (положения зон указаны на рисунке 1):



I зона: Зерно 5-10 мкм, высокая плотность пузырей и частиц  $\epsilon$ -фазы {Mo, Ru, Pd, Tc, Rh} размером 5-10 нм. На границах зерен пузыри 1-10 нм и частиц  $\epsilon$ -фазы размером 10-100 нм.

II зона: Внутри зерна включения 20-100 нм, окруженные дислокациями и связанные с частицами  $\epsilon$ -фазы того же размера.

III зона: Большие включения 3-10 мкм  $\epsilon$ -фазы вдоль границ зерен. На самих  $\epsilon$ -включениях Хе-Кг пузыри и вторичные выделения. Также присутствуют пузыри внутри зерен.

Основное отличие смешанного топлива от LWR топлива состоит в его сильной гетерогенности, а именно, в матрице этого топлива присутствуют обогащенные плутонием включения (до 30% Pu) размером до 200 мкм [10]. Это, очевидно, должно приводить к сильно неоднородному выделению энергии при импульсном нагреве.

Далее в разделе 3 и 4 предложены модели “хрупкой” и “вязкой” моды релаксации неравновесного состояния топлива.



### 3 Модель “хрупкой” моды релаксации неравновесных зернограничных пузырьков с газом

Как следует из анализа экспериментальных данных, проблема поведения топливных стержней включает две части: описание поведения топливных таблеток и описания поведения оболочки ТВЭЛ. В данной работе мы ограничимся рассмотрением первой из них.

Поведение топлива в процессе реактивной аварии может определяться рядом механизмов. Следует отметить, что в ходе реактивной аварии скорость деления атомов урана может возрасти более чем на три порядка по сравнению с номинальным режимом. Следствием этого является такое же увеличение количества треков торможения осколков деления, вызывающих сильные локальные (на размере трека) разупорядочения и разогрев атомной подсистемы. С другой стороны, резкий неоднородный нагрев топливных таблеток приводит к возникновению сильных внутренних напряжений, релаксация которых будет приводить к значительным пластическим деформациям, а также образованию трещин вплоть до разрушения топлива. Существующие численные коды (см., например, [14]) описывают механическое поведение топлива либо не учитывая изменение свойств топлива вследствие изменения его микроструктуры, либо используя простейшие модели типа [2], нуждающиеся, на наш взгляд, в существенном развитии.

Особенностью выгоревшего топлива является сильно развитая пористость, эволюция которой в процессе быстрого нагрева во многом определяет поведение топлива в целом. В процессе нагрева имеющиеся пузыри за счет роста давления газа внутри них становятся сильно пересжатыми. Процесс их релаксации будет определяться как характеристиками процесса нагрева (скоростью и величиной нагрева), так и характеристиками пористости (размерами пузырей и их концентрацией). В данном разделе мы рассмотрим “хрупкую” моду релаксации зернограничных пузырей. “Диффузионная” мода поведения зернограничной пористости и критерий перехода от одного режима релаксации к другому будут рассмотрены в последующем разделе.

Рассмотрим зернограничный пузырек, характеризующийся следующими параметрами: радиусом в плоскости границы  $R$ , углом в носике  $\theta$ , определяемым по формуле  $\cos \theta = (\gamma_{gb} / 2\gamma_s)$ , и количеством атомов газа  $N$  в пузырьке (см. рис.2). При температуре  $T$  внутреннее давление газа для пузырьков малых размеров ( $R \leq 15 \div 20 \text{ нм}$ ) определяется по формуле

$$P = \frac{NT}{\beta R^3 - bN}, \quad (3.1)$$

где температура измеряется в энергетических единицах,  $b \approx 85A^3$  параметр неидеальности газа, а  $\beta$  – геометрический параметр, характеризующий зернограничную пору, определяемый по формуле

$$\beta = \frac{2\pi(2 - 3\cos \theta + \cos^3 \theta)}{3\sin^3 \theta} \text{ и равный приблизительно } 2 \text{ для угла } \theta \approx 50^\circ.$$

В дальнейшем мы рассмотрим два случая. 1) Давление газов внутри пузырька уравнивается

давлением поверхностного натяжения  $P = \frac{2\gamma_s}{\rho}$ , где  $\rho$  – радиус кривизны поверхности поры  $\rho = \frac{R}{\sin \theta}$ ,

$\gamma = 900 \text{ эрг/см}^2$  коэффициент поверхностного натяжения диоксида урана. 2) Пузырьки в выгоревшем топливе изначально находятся в пересжатом состоянии. В этом случае, согласно результатам работы [4] (30-45 MWd/kgU), давление  $P_0$  в пузырьках размером  $10 \div 100 \text{ нм}$  составляет порядка 1 ГПа, что существенно превышает равновесное давление, определяемое поверхностным натяжением (для  $R \approx 10 \text{ нм}$ ,

$P = \frac{2\gamma_s}{\rho} \approx 0,2 \text{ ГПа}$ ). Величина данного давления оценивалась в [4], исходя из измерений плотности

атомов инертных газов во включениях и с использованием уравнения состояния (1). Эту же величину можно оценить из следующих модельных представлений. Если предположить, что в процессе работы реактора происходит установление равновесия между атомами Хе в пузырьках и в матрице за счет быстрого стекания атомов Хе в пузырьки вдоль треков торможения осколков деления, то

соответствующее условие равновесия выражается равенством химпотенциалов атомов Хе в пузырьках и в матрице:  $\mu_{MATR} = \mu_{BUB}$ . Выражение для химпотенциала атомов неидеального газа имеет вид [15]:

$$\mu_{BUB} \approx T \left( \ln \left( \frac{N_1}{V - N_1 b} \left( \frac{2\pi\hbar^2}{m_{Xe} T} \right)^{3/2} \right) + \frac{N_1 b}{V - N_1 b} \right)$$

$N_1$  есть полное количество атомов газа в пузырьке,  $m_{Xe} \approx 2,2 \cdot 10^{-22}$  г - масса атома ксенона. Выражение для химпотенциала атомов Хе в матрице можно записать в виде:

$$\mu_{MATR} \approx \varepsilon + T \ln \frac{N_2}{M},$$

где  $\varepsilon \approx 9,5$  эв - энергия растворения атомов Хе в диоксиде урана,  $N_2$  - число атомов Хе, а  $M$  - число возможных положений атомов ксенона в объёме  $v$ , приходящемся на один пузырь ( $v = N_{BUB}^{-1}$ , где  $N_{BUB}$  - концентрация пузырей в единице объёма). Если выгорание топлива порядка 4,5%, то в пренебрежении объёмом, занимаемым пузырем по сравнению с  $v$ , можно считать  $N_1 + N_2 = 0,02 M$ . Для пузырей размером 8 нм и плотностью  $2 \cdot 10^{16}$  см<sup>-3</sup> и при температуре порядка 3000К следует  $N_1 \approx 3000$ , а давление, определяемое по формуле (3.1), будет приблизительно равно 3ГПа. В этих условиях в пузырьках будет находиться порядка 15% всего ксенона, накопившегося в процессе деления.

При резком подъеме температуры в таблетке возникают сильные растягивающие напряжения, которые могут приводить к появлению трещин в матрице таблетки. Возникновение напряжений обуславливается разными источниками. Во-первых, при подъеме температуры возрастает давление внутри пузырьков, что приводит к росту напряжений в их непосредственной окрестности. Во-вторых, суммирование напряжений от отдельных пузырьков приводит к возникновению напряжений на макроскопических масштабах. В-третьих, наличие резкого градиента температуры в периферийной части таблетки, обусловленного потоком тепла наружу, также приводит к возникновению существенных растягивающих напряжений в этой части таблетки. Рассмотрим подробнее эти три источника напряжений.

При резком повышении температуры избыточное давление внутри пузыря для случая 1), когда пузырь изначально равновесный, равно:

$$\delta P = \frac{N_0 T}{\beta R^3 - bN} - \frac{2\gamma}{\rho} = \frac{2\gamma}{\rho} \cdot \frac{T - T_0}{T_0}.$$

Здесь  $R \approx R_0$ , так как  $\delta R \approx R \cdot \delta P / \mu \ll R$ , где  $\mu$  - модуль сдвига,  $\mu \approx 80$  ГПа [16]. Из данных оценок следует, что в этом случае наиболее неравновесными становятся пузырьки малых размеров. Для перегрева  $\delta T / T_0 \approx 3$  и малых размеров пузырей ( $R \approx 2 \cdot 10^{-7}$  см), получаем:  $\delta P \approx 3$  ГПа, что приближается к теоретическому пределу прочности  $\sigma_{crit} \approx \mu / 2\pi \approx 12$  ГПа [17].

В случае 2) поверхностным натяжением можно пренебречь. В итоге рост избыточного давления будет определяться по формуле

$$\delta P = P_0 \frac{T}{T_0}. \quad (3.2)$$

Аналогичная оценка дает  $\delta P \approx 4$  ГПа и изменение давления не зависит от радиуса пузырька. Учитывая, что силы сцепления атомов вдоль границы могут существенно отличаться от сил сцепления внутри кристалла, а также то, что "носик" пузыря является концентратором напряжений, то релаксация внутрипузырькового давления может происходить в результате растрескивания кристалла вдоль границы.

Рассмотрим условие инициирования растрескивания зернограничной поры чечевичной формы (см.рис.2). Для этого вычислим распределение напряжений вокруг поры при условии, что давление внутри поры превышает равновесное ( $\delta P > 0$ ). Данную задачу будем исследовать считая пору вытянутой вдоль оси перпендикулярной плоскости рисунка, то есть рассмотрим двумерный случай. Тогда можно воспользоваться теорией функции комплексного переменного и рассматривать плоскость (x,y) как

комплексную ( $z=x+iy$ ) [18]. При этом напряжения в плоскости с вырезанной областью  $D$  (см.рис.3) выражаются через две аналитические функции  $\varphi(z)$  и  $\psi(z)$  по формулам:

$$\begin{aligned}\sigma_{xx} + i\sigma_{yx} &= \varphi' + \overline{\varphi'} - z\overline{\varphi''} - \overline{\psi'} \\ \sigma_{yy} - i\sigma_{xy} &= \varphi' + \overline{\varphi'} + z\overline{\varphi''} + \overline{\psi'}\end{aligned}$$

Функции  $\varphi$  и  $\psi$  определяются заданными на границе напряжениями (в данном случае избыточным давлением) :

$$\varphi(\zeta) + \zeta \overline{\varphi'(\zeta)} + \overline{\psi(\zeta)} = i \int_0^{\zeta} F_n ds + A ,$$

где  $F_n = \delta P$ ,  $\zeta$  определяет точки границы области  $D$ , а интеграл берется вдоль границы области  $D$ ,  $A$  - произвольная постоянная. Решение данной задачи можно получить, если область  $D_1$  представляет из себя круг единичного радиуса. В этом случае

$$\begin{aligned}\varphi_0(w) &= 0 \\ \psi_0(w) &= \frac{\delta P}{w}\end{aligned}\tag{3.3}$$

Для того, чтобы найти решение для области  $D$ , надо найти конформное отображение переводящее  $z \rightarrow w(z)$ , где  $w$  - плоскость с круговым отверстием, и воспользоваться решением задачи для этого случая, определяемого формулами (3.3). Соответствующими потенциалами в плоскости  $z$  будут  $\varphi_1(z) = \varphi_0(w(z))$ ,  $\psi_1(z) = \psi_0(w(z))$ , где конформное отображение, переводящее  $D$  в  $D_1$  имеет вид

$$w = \frac{\left(\frac{z}{z-2R}\right)^{\frac{\pi}{2(\pi-\theta)}} + 1}{\left(\frac{z}{z-2R}\right)^{\frac{\pi}{2(\pi-\theta)}} - 1}$$

Выпишем асимптотику напряжения  $\sigma_{yy}$  на оси  $x$  при  $x=z-2R \ll 2R$ :  $\sigma_{yy} \approx \delta P \cdot x^{\gamma-1}$ , где  $\gamma = \frac{\pi}{2(\pi-\theta)}$ . При этом известные случаи будут: а)  $\theta = \pi/2$  (что соответствует круглой поре)  $\sigma_{yy} \rightarrow \text{const}$ , б)  $\theta \rightarrow 0$  ( для плоской трещины)  $\sigma_{yy} \propto 1/\sqrt{x}$ . Для  $\theta \approx 50^\circ$ ,  $\gamma \approx 2/3$ .

Для определения момента начала растрескивания воспользуемся силовым критерием, заключающимся в том, что напряжения в "носике" трещины должны превосходить некоторую критическую величину, определяемую свойствами материала  $\sigma_{crit}$ . При этом максимальное значение напряжения определяется величиной

$$\sigma_{max} \approx \delta P \left(\frac{2R}{b}\right)^{1-\gamma},\tag{3.4}$$

где  $b$  - межатомное расстояние. Условие растрескивания имеет вид

$$\sigma_{max} > \sigma_{crit}\tag{3.5}$$

и для случая 1) будет выполняться для пузырей меньших некоторого критического размера, который находится подстановкой в условие (3.5) формул (3.4) и (3.1):

$$R_{crit} = \frac{b}{2} \left( \frac{4\gamma \sin \theta}{b \sigma_{crit}} \frac{\delta T}{T_0} \right)^{\frac{1}{\gamma}}\tag{3.6}$$

Следует учитывать, что  $\sigma_{crit}$  будет определяться не свойствами матрицы, а свойствами границы вдоль которой происходит растрескивание. Предполагая, что прочность границы уменьшается приблизительно в 2÷4 раза, для  $\sigma_{crit} \approx \sigma_{crit}^0 / 3$  и для  $\delta T/T_0 \approx 2$  получаем оценку критического радиуса  $R_{crit} \approx 2,5 \div 3 \text{ нм}$ .

В случае 2)  $\delta P$  не зависит от радиуса пузыря и из формулы

$$R_{crit} \approx \frac{b}{2} \left( \frac{\sigma_{crit}}{\delta P} \right)^{\frac{1}{1-\gamma}} \quad (3.7)$$

для перегревов  $T/T_0 \approx 3$ , следует  $R_{crit} \approx b$ , причем условие растрескивания (3.5) будет выполняться для пузырей с размером  $R > R_{crit}$ . Таким образом, для выбранных параметров условие растрескивания будет выполнено для всех имеющихся на границе пор.

Остановимся подробнее на определении величины  $\sigma_{crit}$ . В общем случае данная величина зависит от сил межатомного взаимодействия и для модельных видов межатомного потенциала может быть выражена через макроскопические величины. Так величина критического напряжения, при превышении которой происходит разрушение абсолютно хрупкого бездефектного кристалла, равна величине

$$\sigma_p = \frac{2 \mu \gamma}{(1-\nu) b e} \quad (\text{см. [19]}), \text{ где } e = 2,7182\dots, \text{ что при подстановке значений входящих параметров}$$

совпадает по величине с теоретическим пределом прочности указанным выше. При рассмотрении критических напряжений в "носике" трещины в [19] получено следующее соотношение  $\sigma_{crit} \approx 1,5 \sigma_p$ . Поскольку случай чечевичной поры занимает промежуточное положение между двумя этими крайними случаями, то в дальнейшем мы будем считать, что для критических напряжений в "носике" чечевичной поры выполняется соотношение  $\sigma_{crit} \approx 1,2 \sigma_p$  (более подробно см. [19]).

Рассмотрим процесс релаксации внутрипузырькового давления за счет растрескивания вдоль границы (см. рис.4). Если предположить, что размер  $L$  срелаксировавшего пузырька будет много больше  $R$  - размера затравочного пузырька, то объемом последнего можно пренебречь и рассматривать задачу о релаксации круглой трещины под действием внутреннего давления. Воспользовавшись результатами работы [19], можно написать, что смещение берегов трещины  $Y(r)$  в направлении перпендикулярном плоскости трещины в зависимости от расстояния  $r$  от центра определяется формулой

$$Y(r) = \frac{2P}{\pi \mu} \sqrt{L^2 - r^2}. \text{ Откуда следует выражение для объема трещины: } V = \frac{4PL^3}{3\mu}. \text{ В}$$

действительности, как это будет следовать из дальнейших вычислений, размер  $L$  ненамного превышает размер затравочного пузыря  $R$ . Решение задачи о релаксации пузыря такой формы довольно сложное, поэтому для оценок мы ограничимся следующими представлениями. Будем считать, что суммарный объем срелаксировавшего пузыря равен

$$V = V_0 + \frac{4PL^3}{3\mu}, \quad (3.8)$$

где  $V_0 = 2R^3$  - начальный размер пузыря,  $P$  - конечное давление в пузыре после релаксации.

Давление с ростом длины трещины падает, однако, как хорошо известно из теории трещин [20] с ростом  $L$  растягивающие напряжения в носике трещины растут  $\propto \sqrt{L}$ , что может быть охарактеризовано коэффициентом интенсивности напряжений (КИНом). Выражение для КИНа в этом случае, также

$$\text{рассчитанное в [19] имеет вид: } K = 2P \sqrt{\frac{L}{\pi}}.$$

Условием отсутствия роста трещины является то, что  $K$  не превосходит некоторой критической величины, являющейся характеристикой материала  $K_{crit}$ . Таким образом, задача об определении конечного размера срелаксировавшего пузыря определяется следующими уравнениями: Конечное давление внутри пузыря определяется формулой

$$P = \frac{K_{crit}}{2} \sqrt{\frac{\pi}{L}}. \quad (3.9)$$

При этом  $L$  определяет конечный размер пузыря по формуле (3.8), а связь давления с объёмом и начальными условиями дается формулой (3.1).

Выражение для  $K_{crit}$ , следующее из энергетического критерия разрушения, эквивалентного силовому критерию для хрупких трещин [21], имеет вид [19]:  $K_{crit} = \sqrt{\mu 2\gamma_s}$ . Данный критерий выводится, например, из условия, что упругая энергия, высвобождающаяся при раскрытии трещины, равна энергии образования свободной поверхности трещины. В данном случае, энергия затрачиваемая на образование свободной поверхности при раскрытии трещины уменьшается на величину  $\gamma_{gb}\Delta S$ , где  $\Delta S$  - изменение площади границы зерна. В результате выражение для КИНа принимает вид  $K_{crit} \approx \sqrt{\mu(2\gamma_s - \gamma_{gb})}$ .

В качестве примера приведем расчет конечного размера  $L$  трещины, имеющей в качестве зародыша неравновесный зернограничный пузырек. Примем следующие значения начальных параметров пузырьков, характерных для реактивной аварии:  $R_0=10\text{нм}$ ,  $P_0=1\text{ГПа}$  (эти параметры соответствуют случаю 2),  $T_0=600\text{К}$ ,  $T=1500\text{К}$ . Из системы уравнений (3.1), (3.8), (3.9) следует выражение для размера трещины:

$$L \approx \sqrt{\frac{NT}{2\gamma_s}}. \quad (3.10)$$

Подстановка значений параметров приводит к следующей величине длины трещины:  $L \approx 16 \text{ нм}$ . В результате раскрытия трещины площадь границы зерна, занимаемая пузырьком, увеличивается приблизительно в 2,6 раза. Видно также, что конечные размеры пузыря  $L$  растут с увеличением начального радиуса  $R_0$  ( $\propto \sqrt{N}$ ). Отметим также, что значение  $K_{crit}$ , в общем случае, зависит от многих факторов (свойств границы, взаимодействия наполняющего пузырек газа с поверхностью пузырька и т.д.), что может привести к появлению численного коэффициента в формуле для  $K_{crit}$ .

Учет затравочного пузырька в центре трещины приводит к двум важным следствиям при расчете конечного размера трещины. Во-первых, для малых (менее  $\sim 8 \text{ нм}$ ) пузырей необходим более тщательный расчет конечного объема сраксированного пузыря, так как при данной оценке не учитывалось изменение объема  $V_0$  при изменении давления. И, во-вторых, необходимо учитывать наличие затравочного пузырька при вычислении напряжений вблизи "носика" растрескавшегося пузыря. В работе [22] рассчитывалось распределение напряжений в плоскости ослабленной отверстием с разрезами (см. рис.5). В частности, там показано, что если на границу области G действует давление P, то распределение растягивающих напряжений вблизи носика имеет вид

$$\sigma_{yy} \approx P \sqrt{\frac{L}{2s}} \sqrt{1 - \left(\frac{R}{L}\right)^4},$$

где  $s=x-L$ , что эквивалентно появлению в выражении для КИНа множителя  $\left(1 - \left(\frac{R}{L}\right)^4\right)$ . Оценка для данного случая показывает, что это приводит к изменению конечной длины  $L$  на величину порядка 5%. Следует отметить, что процесс роста трещины при  $K > K_{crit}$  является достаточно быстрым, так что "носик" трещины до остановки движется со скоростью порядка скорости звука.

Для больших выгораний ( $Bu > 30 \text{ MWd/kgU}$ ) оценки показывают, что плотность зернограничных пузырей достаточно велика, так что их размеры сравнимы с расстояниями между ними. В этом случае необходимо учитывать взаимодействие между пузырьками, которое приведет к изменению как критерия для критического радиуса (3.6), (3.7), так и формулы для конечной длины трещины (3.10).

Возникновение напряжений в "носике" чечевичной поры определяется не только давлением внутри пузыря, но и средними напряжениями в матрице, обусловленными радиальным градиентом температур или суммой напряжений, создаваемых пересжатыми пузырьками. Учет этих напряжений приведет к тому, что в выражение для критических значений напряжения (3.4) и в выражение для КИНа избыточное давление и внешние нормальные по отношению к плоскости трещины напряжения войдут в виде суммы. Оценим вклады в суммарное напряжение, определяемые различными механизмами.

Вычислим напряжения, создаваемые совокупностью источников расширения в матрице пересажатыми пузырьками - усредненные на масштабах много больших расстояния между этими источниками. Рассмотрим среду с тензором упругих модулей  $C^0_{iklm}$  и содержащую включения - пересжатые пузырьки. Напряжения в среде  $\sigma^0_{ik}$  связаны с деформациями  $u^0_{lm}$  законом Гука

$$\sigma^0_{ik} = C^0_{iklm} u^0_{lm}$$

Усреднение по объёму заполненному средой приводит к следующему соотношению между средними напряжениями  $\sigma_{ik} = \langle \sigma^0_{ik} \rangle$  и средними деформациями  $u_{ik} = \langle u^0_{ik} \rangle$  (см. [23]):

$$\sigma_{ik} = C^0_{iklm} u_{lm} + \langle \sigma^b_{ik} \rangle_b - C^0_{iklm} \langle u^0_{lm} \rangle_b \quad (3.11)$$

где  $\langle \sigma^b_{ik} \rangle_b = -P_1 \frac{4}{3} \pi R_1^3 n \delta_{ik}$  - напряжения усредненные по объёму занятому пузырьками, где  $P_1$  - давление внутри пузырьков,  $n$  - их плотность в  $\text{см}^3$ ,  $R_1$  радиус одного пузырька. С учетом выражения для тензора упругих модулей  $C^0_{iklm}$  для изотропного тела, последнее слагаемое в (3.11) преобразуем к виду:

$$C^0_{iklm} \int_{V_b} u_{lm} dV = \frac{En}{2(1+\nu)} \oint \left( u_k n_i + u_i n_k + \frac{\nu}{1-2\nu} u_l n_l \delta_{ik} \right) dS, \quad (3.12)$$

где интегрирование проводится по поверхности пузырька. Смещения границы пузырька определяются как давлением внутри пузырька, так и напряжениями в матрице. Для самосогласованного расчета возникающих напряжений необходимо решить уравнение равновесия для напряжений  $\sigma_{ik}$ , определяемых формулами (3.11), (3.12). Чтобы определить смещения на границе воспользуемся модельной задачей о нахождении смещений границы полости радиуса  $R_1$ , когда внутри полости задано давление  $P_1$ , а при  $R=\infty$  напряжения равны средним напряжениям в матрице (см. [20]).

Для решения данной задачи разобьём средние напряжения на часть связанную с равномерным всесторонним сжатием  $\frac{\sigma_{ll}}{3} \delta_{ik}$  и часть связанную с чистым сдвигом  $\sigma^*_{ik} = \sigma_{ik} - \frac{\sigma_{ll}}{3} \delta_{ik}$ . Тогда смещения на границе области будут суперпозицией смещений  $u_i^{(1)}$  и  $u_i^{(2)}$ , которые определяются следующими граничными условиями.  $u_i^{(1)}$  есть смещения границы полости при давлении внутри полости  $P_1$  и всестороннем сжатии на бесконечности  $-\frac{\sigma_{ll}}{3} \delta_{ik}$ . В этом случае значение интеграла в правой части

(3.12) равно:  $\oint^{(1)} \dots dS = \frac{4\pi}{3} R_1^3 \frac{2-3\nu}{1-2\nu} \left( P_1 \frac{1+\nu}{2E} + \sigma_{ll} \frac{1-\nu}{2E} \right)$ . Смещения  $u_i^{(2)}$  есть решение задачи об

определении смещений границы полости, при условии что внутри полости давление равно нулю, а на бесконечности заданы чисто сдвиговые напряжения  $\sigma^*_{ik}$ . В этом случае вычисление интеграла в правой части (3.12) приводит к выражению:  $\oint^{(2)} \dots dS = \frac{4\pi}{3} R_1^3 \sigma^*_{ik} \frac{4(4-5\nu)(1+\nu)}{(7-5\nu)E}$ . В итоге получаем

следующее выражение для связи средних напряжений и деформаций в изотропной среде при наличии пересжатых пузырьков:

$$\begin{aligned} \sigma_{ik} = & \frac{E}{1+\nu} \left( u_{ik} + \frac{\nu}{1-2\nu} u_{ll} \delta_{ik} \right) - \frac{4\pi}{3} R_1^3 n P_1 \frac{3(3-2\nu)}{4(1-2\nu)} \delta_{ik} - \\ & - \frac{4\pi}{3} R_1^3 n \sigma_{ll} \frac{(1-\nu)(2-\nu)}{4(1+\nu)(1-2\nu)} - \frac{4\pi}{3} R_1^3 n \sigma^*_{ik} \frac{2(4-5\nu)}{7-5\nu} \end{aligned} \quad (3.13)$$

Третий и четвертый члены в правой части (3.13) можно учесть как поправки к модулям упругости (см. [23]). При этом величина поправок (для характерных параметров облученного топлива [24]  $R_1 \approx 8 \text{ нм}$ ,  $n \approx 1,5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ ) будет порядка  $\frac{4\pi}{3} R_1^3 n \approx 10^{-2}$ . В итоге выражение для средних напряжений примет вид:

$$\sigma_{ik} = C_{iklm}^{eff} u_{lm} - P_1 \frac{4}{3} \pi R_1^3 n \frac{3(2-3\nu)}{4(1-2\nu)} \delta_{ik}$$

Данное выражение по форме совпадает с выражением для напряжений с учетом термоупругих деформаций, причем роль источника напряжений в обоих случаях играет выражение стоящее при  $\delta_{ik}$ . Для оценки будем считать, что избыточное давление внутри пузырей определяется формулой  $P \approx P_0 \delta T / T_0$ . Тогда для характерных параметров облученного топлива [24]  $P_1 \approx 1 \text{ ГПа}$ ,  $T_0 \approx 800 \text{ К}$ , получаем  $\frac{P_1}{T_0} \frac{4}{3} \pi R_0^3 n \frac{3(2-3\nu)}{4(1-2\nu)} \approx 10^{-4} \text{ ГПа/К}$ , что на порядок меньше  $\alpha E \approx 6 \cdot 10^{-3} \text{ ГПа/К}$ , описывающего источник напряжений за счет теплового расширения матрицы.

Рассмотрим напряжения, возникающие в результате наличия резкого градиента температуры в периферийной части таблетки. Для этого воспользуемся аналитическим решением задачи о поле напряжений в неоднородно нагретом цилиндре с аксиально-симметричным распределением температуры [20]. В соответствии с [20], возникающие тангенциальные напряжения на расстоянии  $R$  от оси выражаются следующей формулой:

$$\sigma_{\theta\theta} = \frac{\alpha E}{3(1-\nu)} \left\{ \frac{1}{R^2} \int_0^R \Delta T(\xi) \xi d\xi + \frac{1}{r^2} \int_0^r \Delta T(\xi) \xi d\xi + \frac{\nu}{1-2\nu} \Delta T(r) \right\},$$

где  $\Delta T(r) = T(r) - T(R)$ ,  $\alpha = \frac{1}{V} \left( \frac{\partial V}{\partial T} \right)_P$  - коэффициент теплового расширения. Для модельного профиля температур  $T = T_C - (T_C - T_R) \exp\left(\frac{r-R}{l}\right)$ , получаем следующее выражение для напряжений:

$$\sigma_{\theta\theta} = \frac{\alpha E}{2} (T_C - T_R) \left( 1 - \frac{2l}{R} \right)$$

Здесь  $T_C$  - температура в центре таблетки,  $T_R$  - температура на поверхности,  $l$  - характерный масштаб изменения температуры на краю. Подставляя значения, характерные для топливной таблетки  $\alpha \approx 3 \cdot 10^{-5} \text{ К}^{-1}$ ,  $E \approx 240 \text{ ГПа}$ ,  $\Delta T \approx 1000 \text{ К}$ , для максимальных растягивающих напряжений получаем величину приблизительно 3,5 ГПа. Это значение сравнимо с величиной давления внутри пузырей и должно учитываться как при определении критерия начала растрескивания, так и при определении конечных размеров срелаксировавших пузырей. Величина напряжений оказывается ниже теоретического предела прочности для бездефектного кристалла. Однако предел прочности спеченного поликристаллического топлива существенно меньше, чем для монокристаллических образцов. Происхождение радиальных микротрещин, наблюдавшихся в экспериментах [25], где облучению подвергалось свежее топливо при общем энерговыделении порядка 200 кал/г, вероятно, связано именно с температурным механизмом напряжений.

#### 4 “Вязкая” мода релаксации неравновесных зернограничных пузырьков с газом

Наряду с релаксацией пузырей за счет растрескивания поликристаллической матрицы вдоль границы зерна, возможен другой механизм уменьшения внутрипузырькового давления, а именно, в результате увеличения их объема вследствие натекания вакансий. Поскольку на границе зерен процесс зарождения и диффузии вакансий значительно облегчен по сравнению с объемом, то естественно считать, что основным источником вакансий является именно зернограничная область. В литературе [2], [26] данная мода релаксации пузырьков получила название “диффузионной” или “вязкой” моды.

В [2] предложена следующая модель “диффузионной” моды. Рассматривался зернограничный пузырь радиуса  $R$  с прилегающей к нему областью размером  $L$ . В области  $R \leq r \leq L$  в стационарном случае уравнение для концентраций вакансий имеет вид:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} C = 0 \quad (4.1)$$

На поверхности пузыря концентрация связана с давлением внутри пузыря выражением:

$$C|_R = C_0 \exp\left(-\frac{\delta P \cdot \omega}{T}\right), \quad (4.2)$$

где  $\delta P$  - степень пересжатости пузырька,  $\omega$  - атомный объем,  $T$  - температура в энергетических единицах. На расстоянии  $L$ , определяемом полурасстоянием между соседними пузырями, концентрация вакансий задается равновесной и граничное условие принимает вид:

$$C|_L = C_0 \quad (4.3)$$

Решение системы (4.1)-(4.3) для концентрации от радиуса  $r$  имеет вид:

$$C = C_0 + (C_0 - C(R)) \frac{\ln(r/L)}{\ln(L/R)},$$

и скорость роста объема пузыря определяется формулой

$$\frac{dV}{dt} = \frac{2\pi D_{gb} h (C_0 - C(R)) \omega}{\ln(L/R)}. \quad (3.4)$$

Здесь  $h$  - толщина зернограничной области,  $D_{gb}$  - коэффициент диффузии вакансий вдоль границы зерна.

Рассмотрим подробнее физические процессы в зернограничной области и ограничимся анализом внереакторного случая (облучение отсутствует). В отсутствие пузырей равновесная концентрация вакансий устанавливается в результате баланса между процессом генерации вакансий и межузлий и процессом их взаимной аннигиляции. Скорость аннигиляции пропорциональна произведению концентраций -  $\alpha C_v C_i$ , где  $\alpha \sim 4\pi b D_{gb}$  - коэффициент аннигиляции,  $C_i$  - концентрация межузлий. Скорость объемной генерации пар Френкеля  $q$  в отсутствие облучения определяется тепловой частотой колебаний атомов  $\nu_D$ , их энергией образования  $\epsilon_a$  и энергией активации диффузии  $\epsilon_d$ :  $q \sim \omega^1 \cdot \nu_D \cdot \exp(-(\epsilon_a + \epsilon_d)/T)$ , и выражается через значения равновесных концентраций дефектов  $q = \alpha C_v C_i$ . При наличии стока вакансий в зернограничные пузыри их концентрация в зернограничной области будет меньше равновесной, что приведет к возникновению потока в данную область из объема зерна. Связанный с этим дополнительный источник вакансий запишем в виде  $2J_v/h$ , где  $J_v$  - поток вакансий на единицу поверхности границы зерна из объема. Уравнение для вакансий принимает вид:

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} - D_{gb} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial C_v}{\partial r} = q - \alpha C_v C_i + \frac{2J_v}{h}. \quad (4.5)$$



Пересжатые пузыри являются стоками для вакансий, так что установление на границе с пузырем равновесной концентрации приводит к условию (4.2). Учитывая, что на один пузырь находящийся в зернограничной области приходится площадка с линейным размером порядка  $2L$ , из соображений симметрии второе граничное условие при  $r=L$  имеет вид:

$$\left. \frac{\partial C_v}{\partial r} \right|_L = 0. \quad (4.6)$$

Уравнение, аналогичное (4.5) с заменой  $C_v$  на  $C_i$  описывает эволюцию межузлий в зернограничной области. Поскольку часть вакансий уходит на стоки (в пузыри), в зернограничной области образуется избыток межузлий. Избыточные межузлия могут отводиться в объём зерна, что описывается введением соответствующего источника в правой части диффузионного уравнения для межузлий на границе:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} - D_{gbi} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial C_i}{\partial r} = q - \alpha C_v C_i - \frac{2J_i}{h}, \quad (4.7)$$

где  $J_i$  - поток межузлий из граничной области в зерно. Для вычисления  $J_i$  и  $J_v$  нужно рассмотреть процесс обмена точечными дефектами между объёмом зерна и зернограничной областью. Концентрации урановых межузлий в зернограничной области и в объёме зерна связаны соотношением:

$$C_{ig}|_{y=0} = C_i A \exp\left(-\frac{\varepsilon_g - \varepsilon_b}{kT}\right), \quad (4.8)$$

где  $\varepsilon_g$  и  $\varepsilon_b$  энергии образования катионных межузлий в объёме зерна и в зернограничной области, соответственно. Ось  $y$  направлена перпендикулярно границе вглубь зерна. Коэффициент  $A$  учитывает энтропийный вклад в выражение для равновесной концентрации дефектов, а именно, число возможных размещений межузлий в элементарной ячейке урановой подрешетки в объёме зерна и в зернограничной области. Эволюция концентрации межузлий в объёме зерна определяется уравнением:

$$\frac{\partial C_{ig}}{\partial t} = D_i \frac{\partial^2 C_{ig}}{\partial y^2} - \beta(C_{ig} - C_{ig0}). \quad (4.9)$$

Здесь  $C_{ig}$  - концентрация межузлий в объёме зерна,  $C_{ig0}$  - их равновесная концентрация,  $D_i$  - коэффициент диффузии. Последний член в правой части (4.9) описывает аннигиляцию межузлий на стоках, например, на дислокациях,  $\beta = D_i \xi$ . Плотность дислокаций  $\xi$  в облучаемом материале довольно высока ( $\sim 2 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$  при скорости деления урана  $10^{13} \text{ см}^{-3} \text{ с}^{-1}$  [27]). Начальная концентрация и концентрация межузлий при  $y = \infty$  равны равновесной:

$$C_{ig}|_{t=0} = C_{ig}|_{y=\infty} = C_{ig0}. \quad (4.10)$$

Поток  $J$  в уравнении (4.7) определяется через концентрацию  $C_{ig}$ :

$$J = -D_i \left. \frac{\partial C_{ig}}{\partial y} \right|_{y=0}, \quad (4.11)$$

Следует отметить, что избыточные атомы урана в объёме могут находиться в “возбуждённых” краудсионных состояниях, характеризующихся своими параметрами  $\varepsilon_g^*$ ,  $D_i^*$ ,  $A^*$ , эволюция концентрации которых описывается аналогичной системой уравнений. В итоге, результирующий поток межузлий в объём будет равен сумме потоков определяемых данными механизмами.

Система уравнений, аналогичная системе (4.8)-(4.11) будет описывать поток вакансий из объёма в зернограничную область.

Скорость роста объёма пузыря описывается выражением:

$$\frac{dV}{dt} = D_{gb} \left. \frac{\partial C_v}{\partial r} \right|_R 2\pi R h. \quad (4.12)$$

Система (4.5), (4.7), (4.9), (4.12) с граничными условиями (4.2), (4.6), (4.8), (4.10), (4.11) описывает диффузионную моду релаксации зернограничных пузырей при заданном подъёме температуры.

Для оценок мы будем пользоваться следующими выражениями для входящих в систему (4.5)-(4.12) параметров. Толщина зернограничной области  $h \approx 10^7$  см, коэффициент диффузии урановых межузлий в объёме [29]  $D_i \approx 0,1 \cdot \exp(-\epsilon_{di}/T)$  см<sup>2</sup>/с, где  $\epsilon_{di} \approx 2$  эв, и, соответственно, коэффициент диффузии вакансий  $D_v \approx 2 \cdot 10^{-3} \cdot \exp(-\epsilon_{dv}/T)$  см<sup>2</sup>/с, где  $\epsilon_{dv} \approx 2,4$  эв. Энергия образования урановых пар Френкеля составляет [28]  $\epsilon_{fg} \approx 9$  эв. Наиболее неопределённым является значение  $C_{v0}$  (или  $q$  или  $\epsilon_{fb}$ ). Энергия активации самодиффузии урана в объёме составляет приблизительно 5,6 эв [29], что в 2,5 раза превышает величину энергии активации самодиффузии урана в зернограничной области, 2,2 эв. Если предположить, что аналогичным образом соотносятся энергии образования урановых пар Френкеля в зернограничной области  $\epsilon_{fb}$  и в объёме, то для оценок можно считать  $\epsilon_{fb} \approx 3,6$  эв. Соответственно, энергии образования для межузлий в формуле (4.8) и для вакансий будут равны  $\epsilon_g \approx 4,5$  эв и  $\epsilon_b \approx 1,8$  эв. Согласно экспериментам [27], для выгорания 4,5% при температуре облучения  $T \approx 750$  К в объёме зерна образуются пузырьки размером 5-10 нм, и их концентрация составляет приблизительно  $1,2 \cdot 10^{16}$  см<sup>-3</sup>. Исходя из этого, будем полагать  $R \approx 20b$ ,  $L \approx 3,3R$ , так что начальный объём пузыря  $V_0 \approx 7 \cdot 10^{-19}$  см<sup>3</sup>. Объём элементарной ячейки катионной подрешетки составляет  $\omega \approx 4,1 \cdot 10^{-23}$  см<sup>3</sup>.

Оценим характерные времена релаксации зернограничных пузырей при различных температурах. При  $T \approx 1500$  К, входящие в уравнения параметры принимают следующие значения. Коэффициент диффузии вакансий в зернограничной области будем полагать равным  $D_{gb} \approx 10^{-5}$  см<sup>2</sup>/с. Кроме того, будем считать  $D_{igb} \approx D_{gb} \cdot \exp(-(\epsilon_g - \epsilon_b)/T) \approx 2,4 \cdot 10^{-9}$  см<sup>2</sup>/с. Для определения пересатости пузырьков будем исходить из того, что при температуре 750 К давление внутри пузырьков составляет  $P_0 \approx 1$  ГПа (см. раздел 3), что существенно больше давления, определяемого поверхностным натяжением  $2\gamma/\rho \approx 0,18$  ГПа. Тогда для избыточного давления  $\delta P \approx P_0 T/T_0 \approx 2$  ГПа, так что параметр неравновесности равен  $\delta P \omega T \approx 4,1$ , и  $C_R \approx C_0 \exp(-4,1) \approx C_0 \cdot 1,66 \cdot 10^{-2}$ . Чтобы пузырек стал почти равновесным, то есть чтобы параметр неравновесности  $\delta P \omega T$  стал меньше единицы, его радиус должен увеличиться приблизительно на 20%. Равновесная концентрация дефектов в зернограничной области, с учетом приведенной выше энергии образования составляет  $C_0 \approx 2,2 \cdot 10^{16}$  см<sup>-3</sup> и, соответственно, скорость генерации  $q \approx 2 \cdot 10^{21}$  см<sup>-3</sup> с<sup>-1</sup>.

Два характерных времени определяют эволюцию подсистемы вакансий в уравнении (4.6). Время, за которое устанавливается профиль вакансионной концентрации в зернограничной области, порядка характерного диффузионного времени  $\tau_1 \approx 4L^2/\pi^2 D_{gb}$ , а время установления равновесной концентрации между вакансиями и межузлиями в зернограничной области  $\tau_2 \approx C_i^*/q = (\alpha C_R)^{-1}$ , где  $C_i^* = C_{0i} \cdot \exp(\delta P \omega T)$ . Отношение этих времен зависит от температуры и пересатости пузырьков,  $\tau_1/\tau_2 \approx 5 \cdot L^2 \cdot b \cdot \exp(-\epsilon_v/T) \cdot \exp(-\delta P \omega T)/\omega$ . Оценки показывают, что выполняется неравенство  $\tau_2/\tau_1 \gg 1$  вплоть до температуры плавления. Поэтому, если в начальный момент  $C_{0v}$  и  $C_{0i}$  много меньше равновесных, то очень быстро (в данном случае за  $\tau_1 \approx 2 \cdot 10^7$  с) установится квазистационарный профиль и поток вакансий на пузырь будет определяться уравнением (4.5) в квазистационарном приближении ( $\partial C/\partial t = 0$ ). При соотношении  $\tau_2/\tau_1 \gg 1$  также можно пренебречь аннигиляционным членом  $-\alpha C_v C_i$  по сравнению с  $D_{gb} \Delta C_v$ . В результате (4.5) принимает вид

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial C_v}{\partial r} = - \frac{(q + 2J_v/h)}{D_{gb}}$$

Решение этого уравнения с граничными условиями (4.2), (4.5) приводит к профилю концентрации для вакансий:

$$C_v = \frac{q}{4D_{gb}} (R^2 - r^2) + C_R + \frac{(q + 2J_v/h)L^2}{2D_{gb}} \ln \frac{r}{R}$$

Максимальная концентрация достигается при  $r=L$  ( $T=1500$ К):  $C_v(L) \approx C_R + qL^2/4D_{gb} \approx C_R + 3 \cdot 10^{-3} C_0 \ll C_0$ .

Вычисляя поток вакансий на пузырь, получаем выражение для скорости роста объёма пузыря:

$$\frac{dV}{dt} = \pi h q (L^2 - R^2) \omega \approx 4\pi^2 D_{gb} h C_{v0}^2 \omega (L^2 - R^2) b \quad (4.13)$$

Поскольку часть вакансий уходит в пузырь, а вакансии и межузлия рождаются парами, то происходит накопление избыточных межузлий. В результате будет расти концентрация межузлий, и увеличиваться аннигиляционный член  $-\alpha C_v C_i$ . Это, в свою очередь, приведет к уменьшению средней концентрации вакансий. В пределе средняя концентрация будет равна  $C_R$ , так что поток вакансий в пузырь, пропорциональный  $(C(L) - C_R)/L$ , стремится к нулю. Поскольку число рождающихся дефектов  $q$  равно числу аннигилирующих, то наступит равновесие при котором рост пузырей прекратится. Время установления такого равновесия равно  $\tau_2 \approx C_i^* / q$ . Оценивая эту величину, получаем  $\tau_2 \approx 6 \cdot 10^{-4} c$ . Учитывая, что скорость роста пузыря в соответствии с формулой (4.13) будет  $dV/dt \approx 1.3 \cdot 10^{-19} \text{ см}^3 c^{-1}$ , за такое время размер пузыря изменится незначительно:  $\delta V \approx 10^{-22} \text{ см}^3$ .

Дальнейший процесс релаксации зернограничных пузырей будет определяться обменом межузлиями и вакансиями между зернограничной областью и объёмом. Количество межузлий, ушедшее в объём за время  $\tau$ , можно вычислить решая систему уравнений (4.8)-(4.12). В качестве оценки воспользуемся

$$\text{выражением } \delta N \approx 2S \int_0^{\tau} D_i C_i^* A \exp\left(-\frac{\Delta \mathcal{E}}{T}\right) (\sqrt{D_i t})^{-1} dt = 4S \sqrt{D_i} C_i^* A \exp\left(-\frac{\Delta \mathcal{E}}{T}\right) \sqrt{\tau}, \text{ где } S = \pi(L^2 -$$

$R^2) \approx 1,4 \cdot 10^{-11} \text{ см}^2$  площадь границы, приходящейся на один пузырь,  $\Delta \mathcal{E} = \mathcal{E}_g - \mathcal{E}_b$ ,  $A$  - численный коэффициент. Поскольку при  $\tau > \tau_2$  справедливо  $C_i^* \approx C_{i0} \exp(\delta P \omega / T)$ , то, воспользовавшись соотношением (4.8), получаем

$$\delta N \approx 4S \sqrt{D_i} C_{ig0} \exp\left(\frac{\delta P \omega}{T}\right) \sqrt{\tau}, \text{ где } C_{ig0} - \text{равновесная концентрация межузлий в объёме.}$$

Аналогично, скорость прихода вакансий из объёма определяется выражением  $\delta N \approx 4S \sqrt{D_v} C_{vg0} \sqrt{\tau}$ , и, учитывая  $C_{ig0} \approx C_{ig0}$ ,  $D_i \gg D_v$ , получаем  $\delta N_i \gg \delta N_v$ . При подстановке значений параметров получаем следующее выражение для количества ушедших из зернограничной области межузлий (для оценок полагается  $A \approx 1$ )  $\delta N \approx 7 \cdot 10^{-5} \sqrt{\tau}$ . Отсюда видно, что на стадии установления равновесия этими потоками можно пренебречь. В дальнейшем именно этот процесс будет определять скорость роста пузыря, поскольку уход межузлий из зернограничной области и приход вакансий из объёма приводят к появлению нескомпенсированных вакансий, которые стекают в пузырь, приводя к его релаксации. Исходя из условия  $\delta N_i \gg \delta N_v$ , будем пренебрегать вакансионным потоком по сравнению с межузельным.

Скорость роста пузыря пропорциональна  $t^{-1/2}$  до тех пор, пока диффузионная длина ( $\sim \sqrt{D_i t}$ ) не достигнет характерной длины поглощения межузлий на стоках (дислокациях) в зерне. Длина аннигиляции межузлий на стоках есть  $l^* \approx \xi^{-1/2}$ . После этого поток становится равным

$$D_i C_i^* A \exp\left(-\frac{\Delta \mathcal{E}}{T}\right) / l^* \text{ и скорость роста пузыря становится равной константе. Полагая, что}$$

количество вакансий поглощаемых пузырьём равно числу межузлий уходящих в объём зерна, получаем следующие выражения для скорости роста объема пузыря:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\alpha C_R} \leq t \leq \frac{1}{D_i \xi} & \quad \frac{dV_1}{dt} = 2S C_i^* A \exp\left(-\frac{\Delta \mathcal{E}}{T}\right) \sqrt{D_i} \omega / \sqrt{t} \\ \frac{1}{D_i \xi} \leq t & \quad \frac{dV_1}{dt} = 2S D_i C_i^* A \exp\left(-\frac{\Delta \mathcal{E}}{T}\right) \sqrt{\xi} \omega \end{aligned} \quad (4.14)$$

Оценки для выбранных параметров дают  $\tau_3 = (D_i \xi)^{-1} \approx 0,6 \cdot 10^{-3} c$ , и изменение объёма пузыря за этот временной интервал пренебрежимо мало. Второе выражение (4.14) перепишем в виде:

$$2S D_i C_{ib0} \omega e^{\frac{\delta P \omega}{kT}} A e^{-\frac{\mathcal{E}_g - \mathcal{E}_b}{kT}} \sqrt{\xi} = 2S \sqrt{\xi} D_i C_{ig0} e^{\frac{\delta P \omega}{kT}}$$

Аналогичный вклад (с соответствующими  $\varepsilon_g^*$ ,  $D_i^*$ ) будут давать потоки межузлий в “возбужденных” состояниях. Данные по этим величинам в литературе отсутствуют, однако, при вычислении суммарного потока межузлий в объём, следует учесть, что сумма этих потоков по порядку величины должна совпадать с потоком определяемым самодиффузией урана. В итоге, скорость роста пузырей примет вид

$$\frac{dV}{dt} \approx 2 S D_{ug} e^{\frac{\delta P \omega}{kT}} \sqrt{\xi},$$

где  $D_{ug} \approx 0,65 \cdot \exp(-65 \cdot 10^3/T)$  см<sup>2</sup>/с коэффициент самодиффузии урана в объёме зерна [29]. Для релаксации пузыря нужно чтобы  $\delta V \approx 0,7V_0$  и потребуется  $\tau_4 \sim 2 \cdot 10^4$  с. Таким образом, при температуре  $T \approx 1500$  К и выбранных значениях параметров пузыри по данному механизму не будут успевать релаксировать за времена подъёма температуры  $\tau \approx 0,01 \div 1000$  секунд. Отметим, что в соответствии с формулой (4.4)  $dV/dt \approx 2 \cdot 10^{-15}$  см<sup>3</sup> с<sup>-1</sup>, и релаксация должна произойти за  $2,5 \cdot 10^{-4}$  с.

Оценки, проведенные в соответствии с данной моделью, для более высоких температур дают следующие результаты:  $T=1650$  К  $dV/dt \approx 1,2 \cdot 10^{-22}$  см<sup>3</sup> с<sup>-1</sup>, так что время релаксации  $\tau_4 \approx 4 \cdot 10^3$  с. При  $T=1800$  К,  $dV/dt \approx 3,1 \cdot 10^{-20}$  см<sup>3</sup> с<sup>-1</sup>,  $\tau_4 \approx 17$  с, при  $T=1950$  К,  $dV/dt \approx 5,2 \cdot 10^{-19}$  см<sup>3</sup> с<sup>-1</sup>,  $\tau_4 \approx 1$  с, при  $T=2100$  К,  $dV/dt \approx 5,6 \cdot 10^{-18}$  см<sup>3</sup> с<sup>-1</sup>,  $\tau_4 \approx 0,1$  с,  $T=2250$  К,  $dV/dt \approx 4 \cdot 10^{-17}$  см<sup>3</sup> с<sup>-1</sup>,  $\tau_4 \approx 0,012$  с. При этом должно быть выполнено условие, что при нагреве до таких температур не произойдет развитие “хрупкой” моды релаксации.

На основании приведенных оценок можно сделать заключение, что как в экспериментах [9], так и в [10], где нагрев образцов проводился за времена порядка десяти миллисекунд, реализовывалась “хрупкая” мода релаксации зернограничных пузырей, которая приводила к высвобождению существенной доли газовых продуктов деления. Рассматривая результаты экспериментов [2], можно утверждать, что предварительный отжиг при температурах 1300-1500<sup>0</sup>С в течение 1-2 минут не приводил к релаксации зернограничной пористости, как это должно следовать из формулы (4.4), поскольку дальнейшее поведение системы существенно зависело от скорости нагрева. Подробное сравнение результатов экспериментов [2] с предлагаемой здесь моделью затруднено в связи с недостаточностью экспериментальных данных (информации по выходу продуктов деления, описания популяции пузырьков размерами меньше 75 нм).

Поскольку при рассмотрении возможных источников вакансий в зернограничной области не учитывался приток вакансий со свободной поверхности, данная модель применима для областей достаточно удаленных от свободной поверхности. Условием применимости будет  $L_l > (D_{gb} \tau_4)^{1/2}$ , где  $L_l$  - расстояние от поверхности таблетки. Так для  $T=1800$  К модель применима для областей  $L_l > 10^{-2}$  см.

Следует также отметить, что поведение системы при быстром нагреве существенно зависит от размеров зернограничных пузырей, количества газа в них, степени их неравновесности и их концентрации.

## 5 Обсуждение результатов и заключение

В данной работе проведен обзор экспериментальных исследований поведения ядерного топлива в условиях реактивных аварий, и проанализированы механизмы релаксации неравновесной зернограничной пористости (“хрупкая” и “вязкая” моды релаксации) в условиях нагрева топлива в отсутствие облучения. В процессе работы реактора нарабатываемые в топливе продукты деления частично собираются в пузыри, образуя внутризеренную и межзеренную пористость. При повышении температуры облученного топлива возрастает внутреннее давление пузырьков, и одновременно ускоряются процессы диффузионного массопереноса, приводящие к релаксации возникающей неравновесности. Пузырьки находящиеся на межзеренной границе имеют чечевицидную форму, что приводит к тому, что наряду с “диффузионной” модой, возможен другой механизм релаксации давления, а именно, увеличение объема пузырей за счет растрескивания матрицы вдоль межзеренной границы. Если нагрев топлива до температуры, при которой выполняется критерий растрескивания (3.5), происходит за времена  $\tau$  много меньшие характерных “диффузионных” времен релаксации при данной температуре  $\tau_d$ , то развивается “хрупкая” мода релаксации зернограничных пузырей. В обратном предельном случае  $\tau > \tau_d$  будет развиваться “диффузионная” мода, при которой релаксация внутрипузырькового давления происходит вследствие натекания вакансий в пересжатые пузырьки. В общем случае, когда данные времена сравнимы, условие развития хрупкой моды, по-прежнему будет определяться условием (3.5), но при вычислении внутрипузырькового давления необходимо учитывать изменение объема пузырьков определяемое формулой (4.14).

В рамках развитых моделей получены следующие результаты:

- 1). Выписан критерий начала “хрупкой” моды релаксации, связывающий степень нагрева топлива, параметры пузырей и свойства матрицы.
- 2). Показано, что в зависимости от начального состояния зернограничных пузырей, критерий развития “хрупкой” моды может выполняться для различных групп пузырей по размерам.
- 3). Рассмотрен процесс релаксации пузырей за счет растрескивания матрицы, и выписаны выражения для конечного размера пузыря с учетом неидеальности содержащегося в них газа.
- 4). Рассмотрены различные источники внутренних напряжений в топливной таблетке. Оценен вклад растягивающих тангенциальных напряжений на краю таблетки, обусловленный резким градиентом температуры в этой области вследствие теплоотвода с поверхности. Показано, что данные напряжения должны оказывать сильное влияние на динамику релаксации зернограничных пузырей.
- 5). Рассмотрена “диффузионная” мода релаксации зернограничных пузырей. Показано, что основным процессом, лимитирующим скорость релаксации неравновесных зернограничных пузырей является отвод межузельных атомов урана из зернограничной области в объем зерна.
- 6). Выписано выражение для скорости релаксации зернограничных пузырей в зависимости от их температуры, концентрации, степени неравновесности и мощности объемных стоков точечных дефектов, и указаны значения соответствующих параметров.
- 7). На основании полученных формул сделаны оценки скоростей роста пузырей для значения параметров характерных для экспериментов [9], [10]. Исходя из этих оценок сделан вывод о том, что в данных экспериментах выход продуктов деления, определяется “хрупкой” модой релаксации зернограничной пористости. Кроме того, показано, что использовавшаяся ранее модель для “диффузионной” моды роста зернограничных пузырей дает сильно завышенную величину скорости их роста для указанных значений параметров.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ, проект N 96-02-18686.

## Литература

1. G. Bandyopadhyay, Nucl.Technol. 40 (1978), p.62
2. R.G.DiMelfi, L.W.Deitrich Nucl.Technol.43 (1979), p.328
3. St.A.Wright et al Nucl.Technol. 71 (1985),p.326
4. L.E.Tomas, C.E.Beyer, L.A.Charlot JNM 188 (1992)p.80
5. G. Bandyopadhyay, J.F.Buzzell, Ceramic microstructures'76 p.835 Westview Press (1977)
6. Proc.Top.Meeting on LMFBR Safety, Lion France 1982, Eur.Nucl.Soc.
7. S.A.Wright et al, SAND 81-0413, NUREG/CR-3662, Sandia National Laboritory (1983)
8. JNM 188(1992) pp. 154-161, 162-167, 168-176.
9. New results from Pulse Tests in the CABRI Reactor, F.Schmitz, J.Papin, M.Haessler, N.Waekkel NUREG/CP-0149 October 23-25, 1995, p.33.
10. New results from the NSRR Experiments Reactor with High Burnup Fuel, T.Fuketa, et al NUREG/CP-0149 October 23-25, 1995, p. 45.
11. Assesment of Reactivity Transient Experiments with High Burnup Fuel, O.Ozer, R.Yang, Y.Rashid, R.Montgomery, NUREG/CP-0149 October 23-25, 1995, p.93.
12. Recent View to the Results of Pulse Test in the IGR Reactor with High Burnup Fuel. V. Asmolov, L.Egorova NUREG/CP-0149 October 23-25, 1995, p.65.
13. C.Ronchi JNM 96 (1981), p.314
14. J.C.Latche, F.Lamare, M.Cranga, Computing reactivity initiated accidents in PWR, Transactions of the 13th International Conference on SMiRT 1995.
15. Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, Статистическая физика, часть I, Москва, Наука, 1976.
16. MATPRO - A Library of Material Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis, NUREG/CR - 5273 EGG - 2555 , 1990
17. Р. Хоникомб, Пластическая деформация металлов, М. "Мир". 1972.
18. М.А.Лаврентьев, Б.В.Шабат Методы теории функций комплексного переменного, М "Наука", 1987
19. В.М.Александров, Б.И.Сметанин, Б.В.Соболь Тонкие концентраторы напряжений в упругих телах. М. "Наука", 1993.
20. Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц Теория упругости. М. "Наука" 1965.
21. В.З.Партон Механика разрушения. М. "Наука" 1990.
22. В.А.Бородин, В.М.Маничев, А.И.Рязанов Напряженное состояние плоскости, ослабленной отверстием с разрезами. Препринт ИАЭ-4694/1, 1988.
23. А.С.Вавакин, Р.Л.Салганик, Об эффективных характеристиках неоднородных сред с изолированными неоднородностями, Изв. АН СССР, Мех.Тв.Тела, №3, 1975.
24. I.L.F.Ray, H.Thiele, Hj.Matzke, Transmission electron microscopy study of fission product behaviour in high burnup  $UO_2$ , JNM, 188 (1992) p.90-95.
25. G.Negut, M.Popov,  $UO_2$  fuel behavior under RIA type tests, JNM 188 (1992) pp.168-176.
26. D.Hull, D.E.Rimmer, Philosophical Magazin v.4 (1959), p.637
27. I.L.F.Ray, H.Thiele, Hj.Matzke Journ. Nucl. Mat. 188 (1992), pp.90-95.
28. R.A.Jackson, A.D.Murray, J.H.Harding, C.R.A.Catlow Philosophical Magazin A, v.53 (1986), p.27.
29. Hj.Matzke Journal of Chem Soc, Far.Trans. II, 1987, v.83, p.1121.