

UDC 539.219.3

**Diffusion Permeability of Fuel Claddings**<sup>1</sup> Nikolay M. Vlasov<sup>2</sup> Yury G. Dragunov<sup>1</sup> RESC MSOU, Russia

142114, Podolsk Moscow region, K. Gotvald street, st. 2/40,

Dr. (Engineering), Professor

E-mail: chelyapina@pochta.ru

<sup>2</sup> RESC MSOU, Russia

142114, Podolsk Moscow region, K. Gotvald street, st. 2/40,

Dr. (Engineering), Professor

**Abstract.** The article deals with diffusion permeability of fuel claddings under concentration and residual stresses gradients. The analytical dependence of concentration fields and interstitial impurity in cylindrical cladding are given.

**Keywords:** fuel cladding; residual stresses; interstitial impurity; diffusion permeability.

**Введение.** Остаточные напряжения в цилиндрической оболочке твэла изменяют характер протекания диффузионных процессов [1, 2]. Так, например, напряжения сжатия препятствуют миграции примесей внедрения через оболочку, а напряжения растяжения оказывают противоположное действие. Целью данной работы является анализ кинетики диффузионной миграции примесей внедрения через цилиндрическую оболочку с остаточными напряжениями. Предлагаемый модельный анализ имеет непосредственное практическое приложение. Выгорание керамического ядерного топлива ( $UO_2$ , UC, UN) сопровождается увеличением концентрации примесей внедрения (O, C, N) на внутренней поверхности оболочки. Их диффузионная миграция через оболочку зависит от уровня и характера распределения остаточных напряжений.

**Математическое моделирование.** Примеси внедрения взаимодействуют с полем остаточных напряжений разного знака. Потенциал взаимодействия для размерного эффекта (учитывается только несоответствие размеров атомов примеси и основного металла) определяется известным соотношением [3]

$$V = -\frac{\sigma_{ll}}{3} \delta v, \quad (1)$$

где  $\sigma_{ll}$  – первый инвариант тензора остаточных напряжений,  $\delta v$  – изменение объема материала оболочки при размещении примеси внедрения. Первый инвариант тензора остаточных напряжений логарифмически зависит от радиальной координаты (плоская деформация) [4]

$$\sigma_{ll} = \frac{\mu \omega (1 + \nu)}{2\pi(1 - \nu)} \left\{ 1 + 2 \ln \frac{r}{R} + \frac{2 \left( \frac{r_0}{R} \right)^2}{1 - \left( \frac{r_0}{R} \right)^2} \ln \frac{r_0}{R} \right\}, \quad (2)$$

где  $\mu$  – модуль сдвига,  $\nu$  – коэффициент Пуассона,  $\omega$  – угол поворота берегов разреза оболочки.

Равновесная концентрация примесей внедрения экспоненциально зависит от потенциала  $V$

$$C_p = C_0 \exp\left(-\frac{V}{kT}\right), \quad (3)$$

где  $C_0$  – концентрация примесей внедрения на внутренней границе оболочки без остаточных напряжений,  $k$  – постоянная Больцмана,  $T$  – абсолютная температура.

Диффузионная миграция примесей внедрения через цилиндрическую оболочку с остаточными напряжениями описывается нестационарным уравнением диффузии в поле потенциала  $V$  при соответствующих начальном и граничных условиях

$$\frac{1}{D} \frac{\partial C}{\partial t} = \Delta C \pm \frac{\nabla(C\nabla V)}{kT}, \quad r_0 < r < R, \\ C(r,0) = 0, \quad C(r_0,t) = C_p, \quad C(R,t) = 0, \quad (4)$$

где  $D$  – коэффициент диффузии примесей внедрения. Положительное значение второго члена правой части уравнения (4) соответствует напряжениям сжатия на внутренней поверхности оболочки. По логарифмическому закону они переходят в напряжения растяжения на внешней границе оболочки. Отрицательное значение этого члена отвечает случаю, когда напряжения растяжения на внутренней поверхности оболочки сменяются напряжениями сжатия на внешней границе также по логарифмическому закону.

С точностью до постоянных потенциал  $V$  имеет вид [5]

$$V = -A \ln \frac{r}{R}, \quad A = \frac{\mu\omega(1+\nu)}{3\pi(1-\nu)} \delta\nu. \quad (5)$$

Постоянные соотношения (2) не играют роли, поскольку диффузия атомов примеси зависит от градиента потенциала  $V$ . При этом  $\Delta V=0$ , так как  $V$  – гармоническая функция. С учетом соотношения (5) задача (4) математически формулируется следующим образом

$$\frac{1}{D} \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1 \pm \alpha}{r} \frac{\partial C}{\partial r}, \quad r_0 < r < R, \\ C(r,0) = 0, \quad C(r_0, t) = C_p, \quad C(R,t) = 0. \quad (6)$$

Безразмерный параметр  $\alpha$  определяет отношение энергии связи примеси внедрения с полем остаточных напряжений к энергии теплового движения

$$|\alpha| = \frac{\mu|\omega|(1+\nu)\delta\nu}{3\pi(1-\nu)kT}.$$

Оценим величину  $|\alpha|$  для системы Zr-H. Если  $kT = 10^{-20}$  Дж,  $\mu = 4 \cdot 10^{10}$  Па,  $\nu = 0,3$ ,  $|\omega| = 0,3$  рад.,  $\delta\nu = 3 \cdot 10^{-30}$  м<sup>3</sup>, то  $|\alpha| \approx 1$ . Поэтому далее, не нарушая общности, безразмерный параметр  $\alpha$  принимаем равным единице по модулю. Знак этого параметра зависит от вида остаточных напряжений в цилиндрической оболочке. Если  $\omega < 0$  (напряжения растяжения на внутренней поверхности), то принимают  $\alpha = -1$ . В этом случае кинетика диффузии примесей внедрения с учетом знака уравнения (4) находится из решения задачи

$$\frac{1}{D} \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial C}{\partial r}, \quad r_0 < r < R, \\ C(r,0) = 0, \quad C(r_0, t) = C_p^1, \quad C(R,t) = 0, \quad (7)$$

где  $C_p^1 = C_0 \exp\left(-\frac{V}{kT}\right)_{r=r_0} = C_0 \left(\frac{R}{r_0}\right)$ .

**Обсуждение.** Остаточные напряжения данного вида изменяют симметрию уравнения диффузии: диффузионный процесс в цилиндрической оболочке протекает по закону сферической симметрии. Преобразование координатной зависимости уменьшает скорость формирования концентрационного профиля. Решение задачи (7) дает концентрационное поле примесей внедрения для данного типа остаточных напряжений

$$\frac{C}{C_0} = \frac{R}{r} \left\{ \frac{R-r}{R-r_0} - \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin \frac{\pi n(r-r_0)}{(R-r_0)}}{n} \exp \left[ -\frac{\pi^2 n^2 D t}{(R-r_0)^2} \right] \right\}. \quad (8)$$

Для  $\omega > 0$  (напряжение сжатия на внутренней поверхности оболочки) принимают  $\alpha = 1$ . Теперь кинетика диффузии примесей внедрения с учетом знака уравнения (4) определяется из решения задачи

$$\frac{1}{D} \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial^2 C}{\partial r^2}, r_0 < r < R,$$

$$C(r, 0) = 0, C(r_0, t) = C_p, C(R, t) = 0, \quad (9)$$

где  $C_p = C_0 \exp\left(-\frac{V}{kT}\right)_{r=r_0} = C_0 \left(\frac{r_0}{R}\right)$ . И снова остаточные напряжения другого вида изменяют

симметрию задачи. Теперь диффузия примесей внедрения в цилиндрической оболочке происходит по закону плоской симметрии. Такое преобразование координатной зависимости увеличивает скорость формирования профиля концентрации. Поле концентрации атомов примеси для данного закона распределения остаточных напряжений имеет вид

$$\frac{C}{C_0} = \frac{r_0}{R} \left\{ \frac{R-r}{R-r_0} - \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin \frac{\pi n (r-r_0)}{R-r_0}}{n} \exp \left[ -\frac{\pi^2 n^2 D t}{(R-r_0)^2} \right] \right\}. \quad (10)$$

Проведем сравнительный анализ соотношений (8) и (10). Для этого запишем их в виде

$$a) \frac{C}{C_0} = \frac{R}{r} f(r, t), \quad б) \frac{C}{C_0} = \frac{r_0}{R} f(r, t), \quad (11)$$

где через  $f(r, t)$  обозначено выражение в фигурных скобках. Диффузионный поток атомов примеси через внешнюю поверхность оболочки при  $C(R, t) = 0$

$$\vec{j} = -D \left( \frac{\partial C}{\partial r} + \frac{C}{kT} \frac{\partial V}{\partial r} \right)_{r=R} = -D \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R} \quad (12)$$

позволяет выявить вклад остаточных напряжений разного знака в процесс диффузии примесей внедрения. Диффузионные потоки примесей внедрения для соотношений (11) имеют разное значение

$$a) \left| \vec{j} \right| = DC_0 \frac{\partial f}{\partial r} \Big|_{r=R}, \quad б) \left| \vec{j} \right| = \frac{DC_0 r_0}{R} \frac{\partial f}{\partial r} \Big|_{r=R}. \quad (13)$$

Анализ выражений (13) показывает, что основной вклад в диффузионный поток примесей внедрения дает равновесная концентрация на внутренней поверхности оболочки. Если внутренняя область цилиндрической оболочки находится в состоянии сжатия, то поток атомов примеси через внешнюю поверхность существенно меньше по сравнению с остаточными напряжениями другого знака. Поэтому для уменьшения выхода примесей внедрения через оболочку твэла при выгорании керамического ядерного топлива необходимо создавать сжимающие напряжения в окрестности внутренней поверхности оболочки. Это справедливо и для предотвращения выноса продуктов деления ядерных реакций.

**Выводы.** Если внутренняя область оболочки находится в состоянии растяжения, то диффузионный поток примесей внедрения через внешнюю границу является максимальным. Напряжения растяжения увеличивают равновесную концентрацию примесей внедрения по сравнению с отсутствием напряжений. Если же внутренняя область оболочки находится в состоянии сжатия, то диффузионный поток примесей внедрения через внешнюю границу является минимальным. Напряжения сжатия уменьшают равновесную концентрацию примесей внедрения по сравнению с отсутствием напряжений. Проведенный анализ показал также, что ускорение или замедление кинетики процесса за счет изменения координатной зависимости уравнения диффузии не имеет решающего значения. Диффузионная миграция примесей внедрения через цилиндрическую оболочку с остаточными напряжениями определяется, как правило, значением концентрации на внутренней границе. Поэтому для уменьшения выноса примесей внедрения и продуктов деления через оболочку твэла следует на ее внутренней поверхности создавать напряжения сжатия.

**Примечания:**

1. Власов Н.М., Федик И.И. Расслоение твердого раствора в поле остаточных напряжений // ДАН. 2002. том 382. № 2. С. 186–189.
2. Власов Н.М., Федик И.И. Диффузия примесей внедрения через цилиндрическую оболочку с остаточными напряжениями // ДАН. 2002. том 384. № 3. С. 324-327.
3. Теодосиу К. Упругие модели дефектов в кристаллах. Перев. с англ. М.: Мир, 1985. 351 с.
4. Лурье А.И. Теория упругости. М.: Наука, 1970. 939 с.
5. Власов Н.М. Равновесные и неравновесные примесные атмосферы // ДАН. 2001. том 377. № 4. С. 464–467.

УДК 539.219.3

**Диффузионная проницаемость оболочек тепловыделяющих элементов**

<sup>1</sup> Николай Михайлович Власов

<sup>2</sup> Юрий Григорьевич Драгунов

<sup>1</sup> РОНЦ МГОУ, Россия

142114, г. Подольск, Московская область, ул. К. Готвальда, зд. 2/40.

Доктор технических наук, профессор

<sup>2</sup> РОНЦ МГОУ, Россия

142114, г. Подольск, Московская область, ул. К. Готвальда, зд. 2/40.

Доктор технических наук, профессор, член-корреспондент РАН

E-mail: chelyarina@pochta.ru

**Аннотация.** В статье рассматривается диффузионная проницаемость оболочек тепловыделяющих элементов с учетом градиентов концентрации и остаточных напряжений. Приведены аналитические зависимости для поля концентрации примесей внедрения в цилиндрической оболочке.

**Ключевые слова:** Оболочки тепловыделяющих элементов; остаточные напряжения; диффузионная проницаемость.