РАЗДЕЛ ПЕРВЫЙ

ФИЗИКА РАДИАЦИОННЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ И ЯВЛЕНИЙ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ

УДК 539.217; 539.219; 539.219.3

ЭВОЛЮЦИЯ АНСАМБЛЯ ПОР В ОБЛУЧАЕМОМ МАТЕРИАЛЕ

В.В. Слезов[1], О.А. Осмаев[2], Р.В. Шаповалов[1]
[1]ИТФ Национального научного центра «Харьковский физико-технический институт» г. Харьков, Украина;
E-mail: r_v_shapo@kipt.kharkov.ua; тел. +38(057)700-62-57;
[2]УГАЖТ, г. Харьков, Украина;
E-mail: osmayev@kart.edu.ua; тел. +38 (057)730-10-37

Проведено теоретическое исследование газового распухание двуокиси урана. Рассматривается приближение изотропного материала, в котором под облучением зарождаются пары Френкеля, атомы газа, дислокационные петли и газовые поры. Выяснено, что наличие механической нагрузки приводит к анизотропному распределению дислокационных петель. Найдено аналитическое выражение для относительной скорости распухания образца в предельном случае малых пор. Рассмотрены случаи неподвижных и движущихся пор.

1. ВВЕДЕНИЕ

В данной работе из всего многообразия процессов, происходящих в тепловыделяющем элементе, в качестве объекта исследования выбраны процессы газовыделения и распухания. Распухание и выход газа являются взаимодополняющими явлениями. Действительно, область топлива со значительным газовыделением имеет низкое распухание, поскольку в топливе остается мало газа для образования газовых пузырьков. Наоборот, участки топлива, содержащие весь образовавшийся газ, имеют значительное распухание. Эта взаимосвязь хорошо прослеживается при рассмотрении поведения газообразных продуктов деления в зависимости от местоположения топливного участка по радиусу твэла. В периферийной холодной зоне топлива, где температура недостаточна для активации броуновского движения газовых пузырьков, мало как газовыделение, так и распухание. В промежуточной по радиусу твэла зоне выход газов становится весьма заметным, а также наблюдается довольно большое распухание, поскольку значительная доля газов остается в топливе в виде пузырьков. Среди всех продуктов деления, в том числе и газообразных, в реакторах на тепловых нейтронах важнейшую роль играют ксенон и криптон. Эти инертные газы обладают двумя характерными особенностями – чрезвычайно малой растворимостью и предпочтительно газообразным состоянием. Из первого свойства следует, что эти газы выделяются из топлива всегда, когда это кинетически возможно. Второе свойство приводит к тому, что выделившиеся газы будут стремиться или полностью выделиться из топливной матрицы и накапливаться в свободном объеме внутри твэла, или образовывать газовые пузырьки внутри топлива.

При первом варианте развития событий свойства топлива ухудшаются следующим образом: вышедший из топлива газ увеличивает давление в твэле, вызывая тем самым напряжения в оболочке, рост которого может даже привести к ее разрушению. Эти активные газообразные продукты деления в значительной мере определяют возможную опасность, исходящую от активной зоны реактора в случае повреждения оболочки непосредственно в реакторе или при транспортировке отработанного топлива к местам временного хранения. Второй вариант означает, что распухание топлива превысит объемное увеличение, которое вызывается криптоном и ксеноном, пока последние растворены в матрице топлива. Действительно, хотя давление газов в пузырьках может достигать величины 200 атм, их плотность при температуре выше 1000 К значительно ниже плотности твердого топлива. Распухание способствует возникновению контакта между топливом и оболочкой, результатом чего являются напряжения, возникающие в оболочке, и сокращение срока ее службы. Кроме того, газ обладает меньшей, чем топливо, теплопроводностью, что, естественно, ведет к росту температуры по сравнению с абсолютно плотным топливом при том же тепловыделении.

В работе [1] утверждается, что основное внимание в изучении газовой пористости ядерного топлива необходимо уделить различным изотопам ксенона. В этой работе приводятся данные, свидетельствующие, что атомы ксенона могут двигаться в двуокиси урана посредством комплексов постоянного размера. Простейший из таких комплексов содержит атом ксенона связанный с одной урановой и двумя кислородными вакансиями. Такая комбинация обеспечивает электронейтральность комплекса. Во время деления ксеноновые осколки деления приходят в состояние покоя в области решетки, богатой вакансиями, которые генерируются в пиках смещения на последней стадии замедления осколков. В таких условиях с легкостью образуются комплексы. Для примесей, диффундирующих по чисто вакансионному механизму, облучение увеличивает долю вакансий, следовательно, должен возрасти и коэффициент диффузии. Радиационного ускорения диффузии ксенона не происходит, поскольку комплекс содержит все необходимые для перемещения атома ксенона вакансии. Коэффициент диффузии ксенона [1]:

$$D_{Xe} = 2.1 \cdot 10^{-4} \exp\left[-\frac{6.3 \cdot 10^{-19}}{T}\right]. \qquad (1)$$

Зарождение газовых пузырьков начинается с образования достаточно стабильных кластеров атомов газообразных продуктов деления, которые впоследствии могут вырасти в наблюдаемые пузырьки. Вследствие термодинамической нерастворимости ксенона в топливе и значительной энергии связи малых кластеров, стабильный кластер, вероятно, состоит всего из нескольких атомов Xe. Если кластеры такой величины образуются в топливе при случайных столкновениях блуждающих атомов газа, то такой процесс называется гомогенным зарождением. Если же имеет место захват атомов газов и образование кластеров на дефектах в кристаллической решетке, которые сильно связывают отдельные атомы газа или каким-либо другим образом способствуют образованию пузырьков, то имеет место гетерогенное зарождение.

Рассмотрим более подробно гомогенное зарождение газовых пор. Предположим, для простоты, что стабильный зародыш пузырька является электронейтральным кластером из двух атомов ксенона и соответствующего количества вакансий. Если температура топлива достаточно высока и атомарно распределенный газ достаточно подвижен, то процесс зарождения начинается сразу же, как только начинается облучение. В течение периода зарождения гораздо более вероятно, что вновь образовавшийся атом Xe встретит другой отдельный атом и образует новый зародыш, но не присоединится к уже существующему двухатомному кластеру. Концентрация зародышей пузырьков увеличивается в течение этого периода до тех пор, пока плотность зародышей не возрастет настолько, что для новых атомов газа станет более вероятным присоединиться к существующему зародышу и вызвать его рост, чем образовывать новые зародыши. Время, при котором достигается такая равновесная точка, называется временем зарождения. Она разделяет периоды зарождения и роста. После этого периода концентрация двухатомных кластеров уменьшается вследствие накопления ими атомов газа.

В [2] предложена теория гетерогенного зарождения, основанная на том, что при всех исследованиях с помощью электронного микроскопа пузырьков с ксеноном в топливных материалах, облученных при температуре, превышающей 1000 К, пузырьки располагаются по прямой линии. На основании этих данных выдвинута гипотеза о спонтанном зарождении пузырьков на треках осколков деления. Считается, что местом зарождения являются участки трека осколка деления, особенно богатые вакансиями. Эти вакансии образовались при столкновениях, которые сопровождаются большой передачей энергии между осколком и атомом решетки, т.е. в пике смещения. Избыточные вакансии стремятся образовать пору вблизи трека осколка. Если концентрация газообразных продуктов деления достаточно высока, то эти поры будут содержать несколько атомов газа каждая. Поры теряют вакансии до тех пор, пока поверхностное натяжение не будет уравновешено давлением атомов газа. По оценкам [2] каждый зародыш содержит примерно четыре атома газа и, следовательно, имеет радиус приблизительно 5 $\mathring{A}$ при механическом равновесии. На каждом треке осколка деления зарождается около пяти газовых пузырьков. Зарождение происходит только в том случае, если концентрация газа в матрице превышает $\sim 10^{19}$ *см*$^{-3}$, что соответствует выгоранию 0.04 %. Если концентрация атомов газа меньше этого значения, то в порах, образованных в пиках смещения, газа недостаточно для того, чтобы обеспечить устойчивость пор. Время зарождения в этой модели равно 1.5×10^5 *сек*. Поведение облучаемого материала на стадии достаточно развитой пористости изучалось в [3]. Из результатов этого исследования следует, что наличие газовой пористости приводит к разделению потоков вакансий и междоузельных атомов.

В отсутствие движущей силы молекулы материала матрицы хаотически осуществляют скачки по внутренней поверхности пузырька. Перемещение молекул приводит к хаотическому блужданию газовых пор. Из множества сил, которые могут вызывать направленное движение пузырьков, определяющее значение имеют высокие градиенты температуры в твэле. При этом возможны три случая.

Во-первых, случай, когда градиент температуры вызывает предпочтительное движение молекул в определенном направлении на внутренней поверхности пузырька за счет поверхностной термической самодиффузии.

Во-вторых, пора может перемещаться при испарении молекул с горячей поверхности с последующим осаждением их на холодной поверхности поры.

Третий механизм – движение пузырька, вызванное макроскопическими диффузионными потоками собственных дефектов в объеме материала. В [4] показано, что для пор в общем случае имеет место зависимость типа $V_x = -\beta R^k$, где коэффициенты k и β зависят от характера массопереноса вещества в поре, при этом всегда $\beta \sim |\nabla T|$. Для механизма миграции пор, основанного на переносе молекул с горячей поверхности на холодную посредством молекулярной диффузии в газе, скорость миграции пропорциональна радиусу поры. В дальнейшем, для определенности, рассмотрим движение пор по первому механизму, который характеризуется двумя параметрами: Q_S^* – теплотой переноса атома за счет поверхностной термической самодиффузии и коэффициентом поверхностной самодиффузии D_S.

В нашей работе построена количественная модель, описывающая распухание топливного материала при наличии газовых пузырьков:

- концентрацию газа, атомарно распределенного в топливной матрице;
- функцию распределения пузырьков по размеру или количеству газа;
- влияние температурного градиента на газовое распухание.

В построенной модели учтен ряд факторов, регулирующих поведение газообразных продуктов деления. При постоянной температуре рассмотрена модель, не учитывающая влияние границ на эволюцию ансамбля пор. Это приближение несущественно ограничивает область применения модели. При наличии градиента температуры рассмотрим материал в виде плоскопараллельной пластины, бесконечной в направлениях *y, z,* и толщины *d* в направлении оси *x*. Внутри пластины поддерживается постоянный градиент температуры $\nabla \dot{O}$: $\nabla Td/T_2 << 1$, $T(x=d)=T_2$, $T(x=0)=T_1$ $T_1>T_2$ (T_1, T_2 – температуры граней $x=0$, $x=d$). Материал матрицы характеризуется набором диффузионных коэффициентов.

2. ОСНОВНАЯ СИСТЕМА УРАВНЕНИЙ

Уравнение, описывающее поведение газовых пор в облучаемом материале – это кинетическое уравнение следующего вида:

$$\frac{\partial f_b}{\partial t}+\frac{\partial}{\partial x}(V_x f_b)+\frac{\partial}{\partial R}(V_R f_b)+\frac{\partial}{\partial N_g}(V_N f_b)=W. \quad (2)$$

Здесь $f_b(R,N_g,x,t)$ – функция распределения пор по размерам поры R, числу атомов газа в поре N_g, координате $x\in[0,d]$. Величина $W=W(R,N_g,x)$ – число пор с параметрами R и N_g, рождающихся в единицу объема материала в точке x. Макроскопическая скорость движения поры $V_x=-(2D_S Q_s^* a|\nabla T|)/T^2R$, знак "-" показывает направление движения поры. Скорость изменения размеров поры и количества содержащихся в ней атомов газа даются соответственно выражениями [5]:

$$V_R=\frac{D^*}{R}(\Delta^*+\frac{3N_g\omega}{4\pi R^3}-\frac{b}{R}); \quad (3)$$

$$V_N=4\pi D_g R(n_g-\delta\,\frac{3N_g}{4\pi R^3}). \quad (4)$$

Здесь $D^*=c_o^vD^v+c_o^iD^i$ – коэффициент самодиффузии атомов матрицы; c_o^v и c_o^i – равновесные концентрации соответственно вакансий и междоузлий; D^v, D^i – коэффициенты диффузии; $\Delta^*=\left[D^v(c^v-c_0^v)-D^i(c^i-c_0^i)\right]/D^*$ – эффективная пресыщенность точечных дефектов; $b=2\gamma\omega/T$; D_g – коэффициент диффузии атомов газа; n_g – концентрация атомов газа в решетке; δ – растворимость газа в материале.

Уравнение баланса для атомов газа учитывает поток атомов газа, транспортируемых порами:

$$\frac{\partial}{\partial t}\left[n_g+\int_0^\infty f_b N_g dRdN_g\right]+\frac{\partial}{\partial x}\int_0^\infty f_b V_x N_g dRdN_g=I_g. \quad (5)$$

Здесь I_g – количество атомов газа, рождающихся в единицу времени в единичном объеме. В дальнейшем будем предполагать, что в системе имеется пористость, развитая настолько, что диффузионный поток атомов газа переносит значительно меньше газа, чем транспортируется порами.

Кинетическое уравнение описывает эволюцию ансамбля междоузельных петель:

$$\frac{\partial f_i}{\partial t}+V_r^i\frac{\partial f_i}{\partial r}=Q(V_r^i,r). \quad (6)$$

Здесь $f_i(r)$ – функция распределения петель по размерам r; $Q(V_r^i,r)$ – количество междоузельных петель, рождающихся в единицу времени в единице объема; V_r^i – скорость роста петли.

$$V_r^i=-\frac{D^*A}{a}(\Delta^*+\zeta_{ik}u_iu_k+\frac{\chi}{r}), \quad (7)$$

где $A=2\pi/\ln\frac{8r}{a}$; $\chi=\frac{aG\omega}{2\pi(1-\nu)kT}\ln\frac{r}{a}$; G – модуль сдвига; ν – коэффициент Пуассона; $\zeta_{ik}=\sigma_{ik}\omega/T$; σ_{ik} – тензор напряжений; u_k – компонента единичного вектора в направлении вектора Бюргерса. Как указано в работе [5], для петель обоих типов $Q=\frac{n_d}{\tau}$, где $n_d=n_d(r)$ – объемная плотность дислокационных сегментов длины *r,* способных образовывать дислокации (т.е. плотность источников); $\tau=r/V_r^i$ – время рождения одной петли радиуса r. Для функции распределения $f_v(r)$ вакансионных петель справедливы аналогичные уравнения:

$$\frac{\partial f_v}{\partial t}+V_r^v\frac{\partial f_v}{\partial r}=Q(V_r^v,r); \quad (8)$$

$$V_r^v=\frac{D^*A}{a}(\Delta^*-\zeta_{ik}u_iu_k-\frac{\chi}{r}). \quad (9)$$

К кинетическим уравнениям примыкают два уравнения баланса вещества:

$$
\begin{aligned}
&\frac{d\Delta^v}{dt} = \omega I^v - \\
&- 2\pi A D^v \int du \left(\Delta^v - c_0^v \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2 \right) - \frac{c_0^v \chi}{\bar{r}} \right) F_v(u) - \\
&- 2\pi A D^v \int du \left(\Delta^v - c_0^v \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2 \right) + \frac{c_0^v \chi}{\bar{r}} \right) F_i(u) - \\
&- 4\pi D^v \int_0^\infty \int_0^\infty dR dN_g R \left(\Delta^v + \frac{3N_g \omega c_0^v}{4\pi R^3} - \frac{c_0^v b}{R} \right) f_b;
\end{aligned}
\qquad (10)
$$

$$
\begin{aligned}
&\frac{d\Delta^i}{dt} = \omega I^i - \\
&- 2\pi A D^i \int du \left(\Delta^i + c_0^i \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2 \right) - \frac{c_0^i \chi}{\bar{r}} \right) F_i(u) - \\
&- 2\pi A D^i \int du \left(\Delta^i + c_0^i \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2 \right) + \frac{c_0^i \chi}{\bar{r}} \right) F_v(u) - \\
&- 4\pi D^i \int_0^\infty \int_0^\infty dR dN_g R \left(\Delta^i - \frac{3N_g \omega c_0^i}{4\pi R^3} + \frac{c_0^i b}{R} \right) f_b.
\end{aligned}
\qquad (11)
$$

Здесь $\Delta^v = c^v - c_0^v$, $\Delta^i = c^i - c_0^i$. Первое слагаемое в (10) – количество вакансий, нарабатываемых под облучением; второе и третье – это поток вакансий на вакансионные и междоузельные дислокационные петли соответственно; четвертое слагаемое описывает уход вакансий на поры. Смысл слагаемых в уравнении (11) такой же, как и в (10). В случае вакансионных петель интегрирование проводится по области, в которой $V_r^v > 0$, а в случае междоузельных – по области, в которой $V_r^i > 0$, что очевидно, так как в противоположном случае петли растворяются. В уравнениях (6)-(11) предполагается, что все петли рождаются одного размера l, и при этом выполняется условие $l >> \left|\chi / \Delta^*\right|$. Рассматривается случай, когда выделенным направлением является ось x, совпадающая с направлением градиента температуры (в случае его наличия). В силу этого предположения механическая нагрузка может быть записана в виде $\zeta_{ik} = (\sigma \delta_{ik})/3 + \zeta_x \delta_{ix} \delta_{kx}$, после интегрирования по полярному углу в (10) и (11) появился множитель 2π, а вместо аксиального угла φ между вектором Бюргерса и осью x введена новая переменная $u = \cos\varphi$. В (10) и (11) фигурируют средние радиусы петель:

$$\frac{1}{\bar{r}} = \left(\int_0^\infty f_{v,i}\, dr \right) \Big/ \left(\int_0^\infty f_{v,i}\, r dr \right) \qquad (12)$$

и средние периметры, приходящиеся на единицу объема материала для вакансионных и междоузельных петель соответственно:

$$F_{v,i}(u) = 2\pi \int_0^\infty f_{v,i}\, r dr\,. \qquad (13)$$

Уравнения (2)-(13) составляют полную систему уравнений, описывающих газовое распухание материала в рассматриваемом приближении. Решение этой системы в аналитической форме можно найти в двух предельных случаях – быстрая, по сравнению с диффузией собственных точечных дефектов, диффузия газа и обратный случай, когда диффузия газа является лимитирующим медленным процессом. Чтобы получить условия, когда один из процессов является лимитирующим, рассмотрим поведение скорости роста поры вблизи точки R_0, которая определяется из условия

$$\Delta^* + (3N_g \omega)/(4\pi R_0^3) - b/R_0 = 0\,,$$

а поведение скорости наполнения поры газом вблизи точки N_{g0} такое, что $n_g - (3N_{g0}\delta)/(4\pi R^3) = 0$. Полагая, что $R = R_0 + \widetilde{R}$ и $N_g = N_{g0} + \widetilde{N}_g$, получим соотношения

$$V_R = \frac{D^*}{R_0^2}\left(\frac{2b}{R_0} - \Delta^*\right)\widetilde{R}\,; \qquad (14)$$

$$V_N = -\frac{3\delta D_g \widetilde{N}_g}{R_0^2}\,. \qquad (15)$$

Из (14) и (15) определим характерные времена: время наполнения поры газом $\tau_g = R_0^2/\delta D_g$ и время изменения размеров поры $\tau_R = R_0^3/D^* b$. В случае $\tau_g >> \tau_R$ или $R_0 << (D^* b)/(\delta D_g)$ диффузия газа является лимитирующим процессом. Этот случай имеет название случая малых пор. При обратном соотношении между характерными временами $\tau_g << \tau_R$ диффузия газа является быстрым, по отношению к диффузии собственных дефектов, процессом. Благодаря соотношению между критическим радиусом и параметрами задачи $R_0 >> (D^* b)/(\delta D_g)$ данный случай носит название случая больших пор. Этот случай исследован в работе [3]. Здесь мы детально исследуем случай малых пор.

3. МАТЕРИАЛ С НЕПОДВИЖНЫМИ ПОРАМИ

При медленной, по сравнению с собственными дефектами, диффузии газа справедливы следующие соотношения:

$$V_R = \frac{D_g \omega}{R\left|\Delta^*\right|}\left(n_g - \delta \frac{\left|\Delta^*\right|}{\omega}\right)\,; \qquad (16)$$

$$V_N = 4\pi D_g R\left(n_g - \delta \frac{\left|\Delta^*\right|}{\omega}\right) - 4\pi D_g \frac{b\delta}{\omega}\,; \qquad (17)$$

$$N_g = \frac{4}{3}\pi R^3 \frac{\left|\Delta^*\right|}{\omega}\,. \qquad (18)$$

Законность приближения (18) для двуокиси урана оправдывается тем, что в интервале температур эксплуатации атомного топлива $b \lesssim 30\,\mathring{A}$ эта величина значительно меньше наблюдаемого радиуса движущихся пор [1]. В этих соотношениях принято во внимание то, что, как будет показано ниже, в стационарном состоянии $\Delta^* = -\left|\Delta^*\right|$. На стадии, когда образование зародышей новых пор практически прекратилось, в системе существует развитая пористость, поэтому начальный разброс пор по размерам практически перестает сказываться, и функция распределения становится δ - образной. Как было сказано выше, экспериментальные данные указывают на то, что в двуокиси урана наиболее вероятно гетерогенное зарождение газовых пор, поэтому правую часть уравнения (2) на стадии зарождения пор можно представить в виде [5]:

$$W = \alpha\ n_g \delta\left(R - R_{cr}\right). \tag{19}$$

Критический размер пор определяется из условия совместного равенства нулю скорости роста поры и скорости наполнения поры газом. В системе с достаточно развитой пористостью величина критического радиуса достигает значительной величины, поэтому вероятность образования термодинамически устойчивой поры за счет гетерофазной флуктуации резко снижается, и соотношение (54) перестает быть справедливым. Как показано в [3], в этом случае вероятностью зарождения новых пор можно пренебречь. Функция распределения в случае малого разброса пор по размерам с достаточной степенью точности может быть записана в виде:

$$f_b = n_b \delta\left(R - R(x)\right)\delta\left(N_g - \frac{4\pi R^3}{3}\frac{\left|\Delta^*\right|}{\omega}\right). \tag{20}$$

Будем искать стационарное решение задачи, другими словами – найдем установившийся режим для вакансионной и междоузельной пересыщенностями. Стационарный режим установится через время t_{st}, для него справедливо условие: $t_{st} > \left(R_{\max}\right)/\left|D^* A \Delta^* / a\right|$. Максимальный размер $R_{\max}$ – это тот размер, до которого могут дорастать дислокационные петли, после чего они становятся равноправными атомными плоскостями. Два уравнения, выражающие баланс вещества, можно скомбинировать в одно:

$$\begin{aligned} \frac{d\left(\Delta^v - \Delta^i\right)}{dt} &= \omega\left(I^v - I^i\right) - \\ &- 2\pi A D^* \int du \left(\Delta^* - \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2\right) - \frac{\chi}{\bar{r}}\right) F_v(u) - \\ &- 2\pi A D^* \int du \left(\Delta^* - \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2\right) + \frac{\chi}{\bar{r}}\right) F_i(u) - \\ &- 4\pi D^* \int_0^\infty \int_0^\infty dR dN_g R \left(\Delta^* + \frac{3N_g \omega}{4\pi R^3} - \frac{b}{R}\right) f_b. \end{aligned} \tag{21}$$

Полная система уравнений в стационарном случае имеет вид:

$$I_g t = n_g(t) + n_b N_g\left(\bar{R}\right); \tag{22}$$

$$N_g\left(\bar{R}\right) = \frac{4\pi \bar{R}^3}{3}\frac{\left|\Delta^*\right|}{\omega}; \tag{23}$$

$$\frac{dN_g\left(\bar{R}\right)}{dt} = 4\pi D_g \bar{R}\left(n_g - \delta\frac{\left|\Delta^*\right|}{\omega}\right) - 4\pi D_g \frac{b\delta}{\omega}; \tag{24}$$

$$\begin{aligned} \omega\left(I^v - I^i\right) &= 2\pi A D^* \int du \left(\Delta^* - \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2\right)\right) F_v(u) + \\ &+ 2\pi A D^* \int du \left(\Delta^* - \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2\right)\right) F_i(u) + \\ &+ 4\pi \int_0^\infty \int_0^\infty dR dN_g R^2 \frac{dR}{dt} f_b. \end{aligned} \tag{25}$$

В последнем уравнении опущены члены, малые для развитой дислокационной подсистемы. Уравнение (22) получено при подстановке функции распределения пор (20) в закон сохранения (5). Решение такой системы уравнений можно найти, следуя методу, развитому в [3].

Для пересыщенности и концентрации газа предполагается справедливой асимптотическая связь:

$$-\left|\Delta^*(t)\right| + n_g(t)\omega / \delta = K_1 / t^{1/3} \tag{26}$$

Из закона сохранения (22) получим асимптотическое поведение размера поры:

$$N_g\left(\bar{R}\right) = K_2 t. \tag{27}$$

Постоянные K_1 и K_2 необходимо определить. Из (26) следует, что действительно справедливо соотношение $\Delta^* = \left|\Delta^*\right|$ и что асимптотически $n_g \to \delta\left|\Delta^*\right|/\omega$ при $t \to \infty$. Выражая решение системы (22)-(24) через эффективную пересыщенность, получим, что

$$n_g = \delta\left|\Delta^*\right|/\omega; \tag{28}$$

$$K_2 = I_g / n_b; \tag{29}$$

$$K_1 = \left(\frac{I_g}{n_b}\frac{\omega}{\delta} + 4\pi D_g b\right) \Bigg/ 4\pi D_g \left(\frac{3\omega I_g}{4\pi\, n_b\left|\Delta^*\right|}\right)^{1/3}. \tag{30}$$

Для того чтобы определить $\left|\Delta^*\right|$, необходимо решить уравнение:

$$\begin{aligned} -\dot{\varepsilon}_{ii} &= 2\pi A D^* \int du \left(\Delta^* - \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2\right)\right) F_v(u) + \\ &+ 2\pi A D^* \int du \left(\Delta^* - \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2\right)\right) F_i(u), \end{aligned} \tag{31}$$

где $\dot{\varepsilon}_{ii}$ – относительная скорость распухания. Чтобы найти средние периметры дислокационных петель, необходимо решить уравнения (6) и (8). Предположим, что число источников вакансионных и междоузельных петель распределено равномерно по углам ориентации их векторов Бюргерса в пространстве. Стационарное решение для функций распределения получим в виде:

$$f_v = \begin{cases} \dfrac{n_v}{l} & R < R_{\max},\ V_r^v > 0 \\ 0 & R > R_{\max} \end{cases}$$

$$f_i = \begin{cases} \dfrac{n_i}{l} & R < R_{\max},\ V_r^i > 0 \\ 0 & R > R_{\max} \end{cases}. \qquad (32)$$

Здесь n_v и n_i – плотность источников. Следовательно, $F_v = \pi R_{\max}^2 n_v / l$ и $F_i = \pi R_{\max}^2 n_i / l$. Наличие дополнительной осевой нагрузки может привести к тому, что выживают лишь петли, вектор Бюргерса которых лежит в некотором интервале углов относительно оси x. Как правило, вероятность зарождения междоузельной и вакансионной петель одинаковы, так что $F_v = F_i = \pi R_{\max}^2 n_d / l$. При достаточно большой внешней нагрузке можно не учитывать упругое взаимодействие петель, следовательно, уравнение (31) можно записать в виде:

$$2\pi A D^* \frac{\pi R_{\max}^2 n_d}{l} \int_{-1}^{1} du \left(\left|\Delta^*\right| + \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2 \right) \right) - \dot{\varepsilon}_{ii} = 0, \qquad (33)$$

где относительная скорость распухания дается соотношением

$$\dot{\varepsilon}_{ii} = \omega I_g / \left|\Delta^*\right| - \omega \left(I^v - I^i \right), \qquad (34)$$

откуда путем несложных вычислений получаем, что

$$\left|\Delta^*\right| = \sqrt{\frac{\omega I_g l}{4\pi^2 A R_{\max}^2 D^* n_d} + \frac{1}{4}\left(\frac{1}{3}(\sigma + \zeta_x) - \frac{\omega \left(I^v - I^i\right) l}{4\pi^2 A R_{\max}^2 D^* n_d} \right)^2} - \frac{1}{2}\left(\frac{1}{3}(\sigma + \zeta_x) - \frac{\omega \left(I^v - I^i\right) l}{4\pi^2 A R_{\max}^2 D^* n_d} \right). \qquad (35)$$

Подставив (35) в (34) и умножив на объем образца, получим аналитическое выражение скорости распухания материала.

4. МАТЕРИАЛ С ДВИЖУЩИМИСЯ ПОРАМИ

В случае наличия температурного градиента может возникнуть необходимость учитывать движение пор. Такая задача была решена в работе [5], однако полученное решение содержало расходимость. Покажем, каким образом для малых пор, движущихся по механизму поверхностной самодиффузии, можно получить сходящееся решение. В случае движения пор стационарность задачи обеспечивается выносом газа из материала через горячую грань. Наиболее вероятной областью гетерогенного зарождения газовых пузырьков представляется именно область межзеренной границы, с одной стороны, как наиболее дефектная, а с другой, – как наиболее обогащенная газом по сравнению с телом зерна. Характерное время установления стационарного режима есть $\tau_{stat} = \left|d / V_x\right|$, и для окиси урана это время мало, если иметь в виду тот факт, что под характерным масштабом задачи d следует понимать средний размер зерна UO_2. Связь между радиусом поры и координатой следует из уравнения:

$$\frac{dR}{dx} = -\left|\frac{V_R}{V_x}\right| = -\frac{D_g \omega}{R\left|\Delta^*\right|}\left(n_g - \delta \frac{\left|\Delta^*\right|}{\omega}\right) \Bigg/ \frac{2 D_S Q_s^* a}{T^2 R}\left|\nabla T\right| \approx -\frac{D_g a^2 T^2}{2 D_S Q_s^* \left|\nabla T\right|} \frac{n_g}{\left|\Delta^*\right|}. \qquad (36)$$

Знак минус связан с выбором системы координат, также принято во внимание, что в силу практически полной нерастворимости ксенона в топливной матрице справедливо соотношение $n_g \omega >> \delta \left|\Delta^*\right|$. Как и в предыдущем случае, законы сохранения вещества можно скомбинировать в одно равенство:

$$2\pi A D^* \frac{\pi R_{\max}^2 n_d}{l} \int_{-1}^{1} du \left(\left|\Delta^*\right| + \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2 \right) \right) + \omega \left(I^v - I^i \right) = \left(4\pi D_g R \omega\ n_g n_b \right) / \left|\Delta^*\right|. \qquad (37)$$

Закон сохранения атомов газа, как легко видеть, принимает вид:

$$\frac{d}{dx} R^2 \left|\Delta^*\right| = -\frac{3 I_g a^2}{8\pi D_S} \frac{T^2}{Q_s^* \left|\nabla T\right| n_b}. \qquad (38)$$

Уравнения (36)-(38) составляют полную систему, определяющую стационарное движение малых пор в поле постоянного градиента температуры. При независящей от координат нагрузке можно получить решение системы в аналитической форме.

Радиус поры:

$$R(x) = \sqrt{R^2(d) + \frac{3 I_g a^2}{8\pi D_S} \frac{T^2}{Q_s^* \left|\nabla T\right| n_b \left|\Delta^*\right|} (d - x)}. \qquad (39)$$

Концентрация газа в материале

$$n(x) = \frac{\dfrac{3 I_g}{4\pi D_g n_b}}{\sqrt{R^2(d) + \dfrac{3 I_g a^2}{8\pi D_S} \dfrac{T^2}{Q_s^* \left|\nabla T\right| n_b \left|\Delta^*\right|} (d - x)}}. \qquad (40)$$

Для эффективной пересыщенности получим уравнение:

$$2\pi AD^* \frac{\pi R_{\max}^2 n_d}{l} \int_{-1}^{1} du \left(\left|\Delta^*\right| + \left(\frac{1}{3}\sigma + \zeta_x u^2 \right) \right) +$$
$$+ \omega \left(I^v - I^i \right) = \frac{3I_g}{2\omega \left|\Delta^*\right|}. \quad (41)$$

Теперь можно найти модуль эффективной пересыщенности точечных дефектов в облучаемом материале с движущимися порами:

$$\left|\Delta^*\right| = -\frac{1}{2}\left(\frac{1}{3}(\sigma + \zeta_x) + \frac{\omega\left(I^v - I^i\right) l}{4\pi^2 AD^* R_{\max}^2 n_d} \right) +$$
$$+ \sqrt{\frac{3I_g}{8\pi\omega} \frac{l}{AD^*\pi R_{\max}^2 n_d} + \frac{1}{4}\left(\frac{1}{3}(\sigma + \zeta_x) + \frac{\omega\left(I^v - I^i\right) l}{4\pi^2 AD^* R_{\max}^2 n_d} \right)^2}. \quad (42)$$

5. ВЫВОДЫ

1. Показано, что предельные случаи малых и больших неподвижных пор описываются в рамках одного подхода.
2. Найден закон распухания материала с неподвижными малыми порами.
3. Для движущихся пор найдено решение, не содержащее расходимостей.
4. Найдена концентрация газа и эффективная пересыщенность собственных дефектов в материале с движущимися малыми порами.

Работа выполнена в рамках Государственной программы фундаментальных и прикладных исследований по проблемам использования ядерных материалов и ядерных и радиационных технологий в сфере развития отраслей экономики.

ЛИТЕРАТУРА

1. Donald R. Olander. *Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements*. Department of Nuclear Engineering University of California, Berkley, 1976.
2. P.S. Maiya. Surface diffusion, surface energy, and grain-boundary free energy of uranium dioxide //*Journal of Nuclear Material*. 1971, v. 40, N 1, p. 57–65.
3. В.В. Слёзов. Диффузионно-дислокационное течение кристалла под влиянием облучения с учетом рождения атомов газа //*УФЖ*. 1968, т. 13, № 9, с. 1507–1514.
4. Я.Е. Гегузин, М.А. Кривоглаз. *Движение макроскопических включений в твердых телах*. М.: "Металлургия", 1971.
5. В.В. Слёзов, О.А. Осмаев, Р.В. Шаповалов. О распределении движущихся пор в материале с источниками атомов газа //*Металлофизика и новейшие технологии*. 2005, т. 27, № 1, с. 45–58.

ЕВОЛЮЦІЯ АНСАМБЛЮ ПОР У МАТЕРІАЛІ ЩО ОПРОМІНЮЄТЬСЯ

В.В. Слезов, О.А. Осмаєв, Р.В. Шаповалов

Проведено теоретичне дослідження газового розпухання двоокису урану. Розглядається наближення ізотропного матеріалу, у якому під опроміненням зароджуються пари Френкеля, атоми газу, дислокаційні петлі й газові пори. З'ясовано, що присутність механічного навантаження приводить до анізотропного розподілу дислокаційних петель. Знайдено аналітичне співвідношення для відносної швидкості розпухання зразка у граничному випадку малих пор. Вивчено випадки нерухомих та рухомих пор.

AN EVOLUTION OF VOIDS ENSAMBLE IN AN IRRADIATED MATERIAL

V.V. Slezov, O.A. Osmayev, R.V. Shapovalov

A theoretical investigation of uranium dioxide gas swelling was carried out. As a model material was used an isotropic one where Frenkel's pair and gas atoms, gas voids and dislocation loops arise under irradiation. It is clarified that the presence of mechanical loading leads to anisotropic distribution of dislocation loops. An analytical expression for a relative swilling velocity was found in the limit case of small voids. It was considered cases of immobile voids and mobile those.