Лекция 20.

Цель.

Обосновать необходимость разработки двухстадийной диффузионной модели миграции ГПД для объяснения полученных экспериментальных результатов. Представить краткий обзор моделей двухстадийного переноса. Рассмотреть систему диффуравнений, условия однозначности и решение стационарной задачи.

План.

1. Качественные представления о двухстадийном диффузионном переносе ГПД. Обзор физических моделей и их сопоставление.

2.Система диффуравнений и условия однозначности.

3. Решение стационарной задачи.

Двухстадийная диффузионная модель. Предпосылки.

При отсутствии внешнего механического воздействия процесс переноса ГПД (газообразные продукты деления) в режиме постоянного облучения определяется диффузией и описывается уравнением диффузии с внутренними источниками и членом, учитывающим выбывание из процесса распадающихся со временем радиоактивных изотопов.

Попытки описать выход ГПД из керамического ядерного топлива (диоксид, карбид, фосфид, нитрид, силицид урана), рассматривая его как однородный материал с объёмным коэффициентом диффузии, не принесли желаемых результатов. Это привело к появлению в 70-е и 80-е годы прошлого века более сложных моделей. В основу таких моделей положено представление о том, что рождение ГПД происходит в зерне (межзеренные границы обеднены делящемся изотопом и в основном представляют скопление пористости), структура которого близка к монокристаллу ураносодержащего соединения с объёмным коэффициентом диффузии. Появляющиеся в зерне ГПД диффундируют на его поверхность, выходят в межзеренное пространство и далее с коэффициентом зернограничной диффузии мигрируют к внешней границе облучаемого топлива.

Мы рассмотрим три модели последовательно придерживающихся основной концепции предыдущего абзаца и феноменологическому подходу к решению основной задачи - восстановление параметров переноса ГПД (коэффициентов объёмной и зернограничной диффузии) по экспериментальным данным выходов короткоживущих изотопов благородных газов.

Двухстадийная диффузионная модель. Краткий обзор.

В работах [25], [26] (1973-1977гг) представлена стационарная модель двухстадийного переноса короткоживущих радиоактивных ГПД в пористых плоской, тонкой пластине и тонкой, цилиндрической втулке. Выход газа с внешней поверхности образцов при нулевых граничных условиях представляется в виде суммы потока из межзеренного пространства с коэффициентом зернограничной диффузии и потока из зерен с объёмным коэффициентом диффузии, находящихся на внешней поверхности образца с учетом ее разветвленности для заданного значения пористости.

Выход газа в межзеренное пространство определяется из решения стационарной задачи для сферического зерна с объёмным коэффициентом диффузии, при постоянном значении концентрации на его границе. Это значение принято равным усредненному по координате в образце (пластина, втулка). Полученное значение выхода ГПД из зерна используется для определения плотности источников газа в межзеренном пространстве образца.

Подробное изложение основных положений 2-ой модели представлено в работе [27] (1975г). Рассмотрена нестационарная задача. Использована та же самая система дифференциальных уравнений и условий однозначности, что и в первой модели, но дополненная временными условиями. Представлено решение нестационарной задачи для сферического образца, заполненного сферическими зернами. Модель обладает двумя существенными отличиями от первой.

Межзеренное пространство представляется в виде тонкого слоя на внешней поверхности зерен, толщину этого слоя предполагается определять в результате сопоставления расчетных соотношений с экспериментальными данными по выходу ГПД из сферического образца.

Второе отличие: для определения объёмной плотности источников газа в межзеренном пространстве используется текущее значение концентрации в образце как граничное на поверхности сферического зерна.

В работе представлено решение стационарной задачи, которое подробно проанализировано для различных частных случаев. Рассмотрен случай возможного захвата части ГПД в межзеренном пространстве дефектами. Модель использована для оценке коэффициентов диффузии йода и теллура.

Развитие третьей модели изложено в работах [28], [29], [30], [31], [32]. Рассматривается нестационарная система дифференциальных уравнений двухстадийной диффузии ранее представленная в предыдущей модели без конкретизации представлений о границах зерен. Решается задача для сферического образца, заполненного сферическими зернами. Стационарная задача используется для нахождения коэффициентов диффузии по экспериментальным данным работы [9]. Полученные значения коэффициентов диффузии используются для расчетов нестационарных выходов ГПД из сферических кернов микротвэлов.

Двухстадийная диффузионная модель. Обзор, выводы.

По представленному краткому обзору можно сделать следующие выводы:

- все модели используют идентичную систему дифференциальных уравнений и условий однозначности.

- предварительные проработки показали, что использованное во второй модели текущее значение концентрации в образце как граничное условие для зерна более продуктивно, т.к. позволяет авторам рассмотреть большее количество важных предельных случаев и иметь более простые выражения для конечных результатов.

- использование в первой модели пористости, как одного из параметров структуры представляется положительным фактом, т.к. эта величина весьма надежно определяется экспериментально.

- представленные в работе [32] (третья модель) результаты расчетов по экспериментальным данным [33] в широком интервале температуры в предположениях наличия или отсутствия ловушек и использование в модели выхода ГПД в межзёренное пространство путем кинетической отдачи и выбивания следует считать перспективным для дальнейшего усовершенствования моделей.

На основании вышеизложенных выводов предлагается следующая **двухстадийная диффузионная модель для стационарного выхода ГПД.** Математическая постановка задачи и условия однозначности, представленные ниже, используют символику работы [3]. **Геометрические условия.**

Геометрические условия.

Рассматривается сферический образец радиуса *R*, состоящий из сферических зерен радиуса *a*. Сферическая форма зерна допустима в модельных представлениях, т.к. оправдана оптическими исследованиями шлифов.

Выбор сферической формы образца в модели допустим по следующим причинам:

- для задач предполагающих изотропию свойств в объёме тела и желании иметь одну пространственную координату такая форма предлагает наиболее строгое решение. Использование образцов другой формы (пластина, цилиндр) либо требует рассмотрения двухкоордитатной задачи, либо увеличения аксиальных размеров для обеспечения необходимой точности в эксперименте. Следует отметить, что при малых значениях коэффициентов диффузии возможно обойтись рассмотрением задач для полупространства, предполагая, что изменение концентрации в телах сосредоточена в тонком приповерхностном слое.

- в работе [27] для экспериментальных исследований изготовлялись специальные образцы сферической формы с зерновой сферической структурой, в работах [28;29;30] исследовались сферические керны для микротвэлов.

- в нашем случае использовались цилиндрические образцы (штатные таблетки-сердечники твэлов энергетических реакторов), радиальные и аксиальные размеры которых не сильно различаются. В этом случае предлагается использовать в модельных расчетах эквивалентный радиус сферического образца, поверхность которого равна эмиссионной поверхности исследуемого. Такой подход позволяет проводить количественные сопоставления экспериментальных результатов для образцов разной формы и размеров.

Двухстадийная диффузионная модель. Физические условия.

Физические условия предполагают изотермические условия в объёме образца, коэффициенты диффузии D_L (объёмный), D_{gb} (зернограничный) являются функцией температуры.

Плотность внутренних источников газа внутри зерен пропорциональна плотности делений в образце.

Межзеренные границы считаются обедненными делящемся изотопов, а источником ГПД в них является газ, вышедший с поверхности зерен в межзеренное пространство.

Образец обладает пористостью $\varepsilon = (d_T - d)/d_T$, где d и d_T плотности поликристаллического образца и теоретическая плотность химического соединения соответственно.

Двухстадийная диффузионная модель. Временные и граничные условия. Система дифференциальных уравнений.

В сферическом образце радиуса *R* распределение концентраций описывается уравнением:

$$\frac{D_{gb}}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial C}{\partial r}\right)+\beta'(C)-\lambda C=\frac{\partial C}{\partial t} \qquad (1)$$

при граничных и временных условиях:

(a) $C = 0$ *при* $r=R$ *для всех* $t>0$

(b) $\partial C/\partial r = 0$ *при* $r=0$ *для всех* $t > 0$

(c) $C = 0$ *при* $t = 0$ *для всех* r *при* $0 \le r \le R$.

Двухстадийная диффузионная модель для стационарного выхода ГПД. Временные и граничные условия для зерна.

Для стационарной задачи производная концентрации по времени принимается равной нулю:

$$\frac{D_{gb}}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial C}{\partial r}\right)+\beta^{'}(C)-\lambda C=\frac{\partial C}{\partial t}=0 \qquad \textbf{(1-1)}$$

Граничное условие (*а*), подразумевает полное удаление газа с поверхности в нашем эксперименте, т.к. его расход специально подбирался для обеспечения этого условия.

Плотность источников газ в межзеренном пространстве *β΄(C)* зависит от концентрации *C*, которая является граничным условием при рассмотрении потока газа в межзеренное пространство из зерен, в частности от местоположения конкретного зерна в объёме образца.

Система уравнений, описывающая процесс диффузии в зерне имеет вид:

$$\frac{D_{gb}}{r'^2}\frac{\partial}{\partial r'}\left(r'^2\frac{\partial K}{\partial r'}\right)+\beta^{'}(K)-\lambda K=\frac{\partial K}{\partial t}=0 \qquad \textbf{(2)}$$

с граничными условиями:

(a) $K = C$ *при r'=a ,* для всех $t > 0$

(b) $\partial k/\partial r = 0$ *при* *r'=0* для всех $t > 0$

(c) $K = 0$ $t = 0$ для всех r', $0 \le r' \le$ a .

Распределение концентрации в зерне и плотность внутренних источников в межзеренном пространстве.

Для стационарных условий уравнение диффузии для зерна имеет вид:

$$\frac{D_L}{r'^2}\frac{\partial}{\partial r'}\left(r'^2\frac{\partial k}{\partial r'}\right)+\beta-\lambda k=\frac{\partial k}{\partial t}=0 \qquad (2\text{-}1)$$

В этом уравнении β – плотность источников газа, зависящая от плотности делений в зерне и доли выхода конкретного изотопа в результате акта деления. Решение уравнения (2-1) имеет вид:

$$k=\left(C-\frac{\beta}{\lambda}\right)\frac{\dfrac{sh\sqrt{\dfrac{\lambda}{D_L}}r'}{r'}}{\dfrac{sh\sqrt{\dfrac{\lambda}{D_L}}a}{a}}+\frac{\beta}{\lambda} \qquad (3)$$

Плотность внутренних источников газа в межзеренном пространстве образца имеет вид:

$$\beta'(C)=\frac{3}{\xi a\varepsilon}\left(\beta/\lambda-C\right)\sqrt{D_L\lambda}\left(cth\sqrt{\frac{\lambda}{D_L}}a-\frac{1}{a}\sqrt{\frac{D_L}{\lambda}}\right)=A\left(\beta/\lambda-C\right) \qquad (4),$$

где $A=\dfrac{3}{\xi a\varepsilon}\sqrt{D_L\lambda}\left(cth\sqrt{\dfrac{\lambda}{D_L}}a-\dfrac{1}{a}\sqrt{\dfrac{D_L}{\lambda}}\right)$,

а – радиус зерна, ε – пористость образца,

ξ - доля межзеренного пространства, участвующая в зернограничной диффузии, определяемая экспериментально и аналогичная δ/2 в работе [3], в нашем случае δ/2 = ξ*а*ε

Двухстадийная диффузионная модель. Выход ГПД с поверхности образца.

Подставим уравнение **(4)** в **(1-1)**:

$$\frac{D_{gb}}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial C}{\partial r}\right)+A\left(\beta/\lambda - C\right)-\lambda C=0 \qquad \textbf{(5)}$$

После преобразований, уравнение **(5)** будет иметь вид уравнения **(2-1)**:

$$\frac{D_{gb}}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial C}{\partial r}\right)+A\beta/\lambda-(\grave{A}+\lambda)C=0 \qquad \textbf{(6)}$$

Относительный выход ГПД с внешней поверхности образца (отношение выхода газа с поверхности образца в единицу времени к количеству газа образующегося в образце в единицу времени) по механизму диффузии по границам зерен имеет следующий вид:

$$F_{gb}=\frac{9}{\xi\varepsilon\grave{a}R(1-\varepsilon)}\sqrt{\frac{D_{gb}D_L}{\lambda(A+\lambda)}}\times\left[\coth\left(a\sqrt{\frac{(A+\lambda)}{D_L}}\right)-\left(\frac{1}{a}\sqrt{\frac{D_L}{(A+\lambda)}}\right)\right] * \left[\coth\left(R\sqrt{\frac{(A+\lambda)}{D_{gb}}}\right)-\left(\frac{1}{R}\sqrt{\frac{D_{gb}}{(A+\lambda)}}\right)\right] \qquad \textbf{(7)}$$