# Конспект занятия 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.

Основной задачей расчетного моделирования является определение параметров переноса газообразных продуктов деления на основе физической модели их миграции в объёме топлива и выход их на внешнюю поверхность. 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, описывающим 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, частично учитывающих структуру керамического ядерного топлива.

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.

Рассмотрим качественные представления о физических процессах, рассматриваемых в моделях и постараемся представить их сильные и слабые стороны.

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 [33]. Полученные значения коэффициентов диффузии используются для расчетов нестационарных выходов ГПД из сферических кернов микротвэлов.

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 [27].

***Геометрические условия.***

Рассматривается сферический образец радиуса *R*, состоящий из сферических зерен радиуса *а*. 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.

***Физические условия.***

Физические условия предполагают изотермические условия в объёме образца, коэффициенты диффузии *DL* (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 *ε* = (dT - d)/dT , где d и dT плотности поликристаллического образца и теоретическая плотность химического соединения соответственно.

***Временные и граничные условия. Система дифференциальных уравнений.***

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

 **(1)**

при граничных и временных условиях:

(а) *C = 0*

(b)   для всех *t* > 0

(c) *C* = 0 *t* = 0 для всех *r*, 0 ≤ *r* ≤ R .

Для стационарной задачи производная концентрации по времени принимается равной нулю:

 **(1-1)**

Граничное условие (*a*), 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 *С*, 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:

 **(2)**

с граничными условиями:

(a) *k = C*

(b)   для всех *t* > 0

(c) *k* = 0 *t* = 0 для всех *r’*, 0 ≤ *r’* ≤ a .

Для стационарных условий уравнение диффузии для зерна имеет вид:

 **(2-1)**

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:

 **(3)**

Плотность внутренних источников газа в межзеренном пространстве образца имеет вид:

 **(4)**,

где

 ,

*а* – радиус зерна,

*ε* – пористость образца,

ξ - доля межзеренного пространства, участвующая в зернограничной диффузии, определяемая экспериментально и аналогичный δ/2 в работе [3]. В нашем случае δ/2 = ξаε

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

 **(5)**

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

 **(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:

 х  **(7)**