

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт проблем безопасного развития атомной энергетики  
Российской академии наук

На правах рукописи



Долгодворов Алексей Павлович

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ В  
НИТРИДНОМ ТОПЛИВЕ

Специальность 05.14.03 – Ядерные энергетические установки,  
включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации

Автореферат  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата технических наук

Москва – 2017

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук.

Научный руководитель: Стрижов Валерий Федорович, доктор физико-математических наук.

Официальные оппоненты: Лиханский Владимир Валентинович, доктор физико-математических наук, профессор, ГНЦ РФ Троицкий Институт Инновационных и Термоядерных Исследований, начальник отдела;

Любимов Дмитрий Юрьевич, кандидат технических наук, ФГУП Научно-Исследовательский Институт Научно-Производственное Объединение «ЛУЧ», ведущий научный сотрудник.

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт высокотемпературной электрохимии Уральского отделения Российской академии наук.

Защита состоится 8 февраля 2018 года в 14:00 на заседании диссертационного совета Д 002.070.01 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук по адресу: 115191, г. Москва, ул. Б. Тульская, д. 52.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук и на сайте <http://www.ibrae.ac.ru/contents/321/>.

Автореферат разослан «\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2017 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
к.т.н.



В.Е. Калантаров

## Общая характеристика работы

**АКТУАЛЬНОСТЬ.** Согласно Федеральной целевой программе «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010-2015 годов и на перспективу до 2020 года» в России ведется работа над реализацией ряда мероприятий, которые включают сооружение опытно-демонстрационного комплекса в составе энергоблока с реактором на быстрых нейтронах (БР), отвечающего принципам естественной безопасности, реализацию технологий замкнутого ядерного топливного цикла, разработку интегрированных систем кодов нового поколения. Одним из перспективных видов топлива в федеральной целевой программе был выбран смешанный нитрид урана и плутония (СНУП). Этот вид топлива обладает высокой плотностью делящихся актинидов на единицу объема и высокой теплопроводностью, что делает возможным обеспечить заданные нейтронно-физические и теплогидравлические свойства реактора, основанного на принципах естественной безопасности. При этом СНУП топливо имеет ряд особенностей. В частности, изотоп  $^{14}\text{N}$ , содержащийся в топливе, конвертируется в результате взаимодействия с нейтронами в изотоп  $^{14}\text{C}$ , период полураспада которого составляет 5700 л, что может затруднить переработку отработавшего ядерного топлива. Помимо этого, в результате ядерных реакций с участием азота образуется водород и гелий, что повышает выход газообразных веществ и, соответственно, вызывает рост газового распухания.

СНУП топливо с содержанием примесей кислорода и углерода до 0,15 % и 0,01 % масс. соответственно и с повышенным содержанием однородно распределенного плутония до 60 % тяж. ат. показало положительные результаты радиационных испытаний. Тем не менее, существовали случаи нарушения герметичности твэлов в других экспериментах. Причиной этого эффекта послужила низкая скорость ползучести и распухание нитридного топлива, при этом рабочий ресурс твэла определялся наступлением контакта между оболочкой твэла и топливом. Таким образом, продолжительность эксплуатации СНУП топлива зависит от оптимальности выбора технологических характеристик, таких как плотность топлива, размер зерна, величина пористости и равномерность ее распределения, степень гомогенности распределения плутония, количество примесей.

В связи с выбором СНУП топлива как одного из потенциальных видов топлива для развития крупномасштабной ядерной энергетики, необходимо предпринимать теоретические исследования по изучению поведения этого вида топлива в условиях эксплуатации. Настоящая диссертационная работа посвящена разработке физико-химических моделей

и созданию программного кода, описывающего поведение продуктов деления СНУП топлива в процессе выгорания.

**ЦЕЛЬ РАБОТЫ.** Построить модель формирования молекулярно-фазового состава в СНУП топливе под облучением, переноса продуктов деления в топливе и их выхода в зазор между топливом и оболочкой. Создать программный модуль, реализующий разработанную модель. Провести сравнительный анализ расчетных результатов моделирования с данными из литературы, а также с экспериментальными данными по облучению СНУП топлива.

**ОБЪЕКТ ИССЛЕДОВАНИЯ.** Смешанное уран-плутониевое нитридное топливо с примесями кислорода и углерода, содержащее в условиях облучения продукты деления актинидов.

**ПРЕДМЕТ ИССЛЕДОВАНИЯ.** Поведение продуктов деления в облученном нитридном топливе, физико-химические аспекты облученного нитридного топлива, такие как формирование молекулярно-фазового состава, диффузия продуктов деления по зернам, миграция по межзеренной пористости и выход из топлива.

**ЗАДАЧИ ИССЛЕДОВАНИЯ.**

- 1) Провести анализ литературы по фазовому составу облученного нитридного топлива, термодинамическим данным, в частности, энергиям Гиббса компонентов системы, коэффициентам диффузии продуктов деления и азота в матрице нитридного топлива.
- 2) Разработать термодинамическую модель и произвести расчет равновесного молекулярно-фазового состава нитридного топлива с продуктами деления и с примесями кислорода и углерода. Провести сравнение с аналогичными результатами из литературы.
- 3) Провести объединение термодинамической модели нитридного топлива с существующей кинетической моделью описания поведения топлива под облучением.
- 4) Создать программный модуль, реализующий построенную модель.
- 5) Выполнить расчет основных параметров, характеризующих поведение продуктов деления, в условиях нормальной эксплуатации нитридного топлива в БР.

**ПОЛОЖЕНИЯ, ВЫНОСИМЫЕ НА ЗАЩИТУ**

- 1) Термодинамическая модель поведения облученного нитридного топлива с продуктами деления и примесями кислорода и углерода.

- 2) Модель, объединяющая термодинамическое и кинетическое описание нитридного топлива в рамках механистического подхода.
- 3) Разработанный программный модуль.
- 4) Модель твердотельного набухания. Описание вклада в набухание топлива, связанного с формированием вторичных конденсированных фаз.
- 5) Модель поведения азота в нитридном топливе.

#### НАУЧНАЯ НОВИЗНА.

Впервые на основе объединения термодинамического и кинетического описания поведения нитридного топлива в рамках механистического подхода создана модель, позволяющая рассчитывать основные характеристики нитридного топлива под облучением в условиях реальной эксплуатации.

#### ДОСТОВЕРНОСТЬ РЕЗУЛЬТАТОВ.

Разработанная модель и программный модуль протестированы, выполнено сравнение с аналогичными расчетами из литературы, а также с экспериментальными данными, полученными в рамках работы проекта BORA-BORA.

#### ПРАКТИЧЕСКАЯ ЗНАЧИМОСТЬ РАБОТЫ.

Программный модуль вошел в состав твэльного кода, рассчитывающего работу твэла в реакторе БР.

#### ЛИЧНЫЙ ВКЛАД АВТОРА.

Все результаты, выносимые на защиту диссертации, получены автором лично, либо при его непосредственном участии, а именно

- 1) Анализ литературы по поиску термодинамических свойств продуктов деления и их соединений в облученном СЧУП топливе.
- 2) Непосредственное участие в постановке задач, разработке математических моделей и написании отдельных подпрограмм программного модуля.
- 3) Проведение расчетов, анализ и обработка результатов, сравнение полученных результатов с литературными данными.

**АПРОБАЦИЯ РАБОТЫ.** Основные этапы и положения диссертационной работы докладывались на следующих конференциях:

- 1) XV Школа молодых ученых ИБРАЭ РАН, 2014 г.;
- 2) XVI Школа молодых ученых ИБРАЭ РАН, 2015 г.;
- 3) XVII Школа молодых ученых ИБРАЭ РАН, 2016 г.;
- 4) 57-я научная конференция МФТИ, 2014 г.;
- 5) 12-я Международная конференция «Забабахинские Научные Чтения – 2014»;

- 6) LXV Международная конференция по ядерной физике «Ядро 2015. Новые горизонты в области ядерной физики, атомной, фемто- и нанотехнологий»;
- 7) Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных «Ломоносов-2016»;
- 8) Международная конференция молодых специалистов, ученых и аспирантов по физике ядерных реакторов «Волга-МИФИ 2016»;
- 9) Конференция молодых специалистов «Инновации в атомной энергетике», 2017;
- 10) International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development (FR17).

СТРУКТУРА И ОБЪЕМ ДИССЕРТАЦИИ. Диссертация содержит введение, 4 главы, заключение, список литературы из 92 использованных источников. Объем диссертации составляет 128 страниц, включая 58 рисунков и 9 таблиц.

## Содержание работы

**Во введении** перечислены основные положения, на которых основан вектор развития ядерных энерготехнологий нового поколения на базе реакторов на быстрых нейтронах с замкнутым ядерным топливным циклом. Важным аспектом развития энерготехнологий является выбор вида ядерного топлива, изучение его свойств и поведения в условиях эксплуатации. В связи с этим во введении обозначена актуальность диссертации по исследованию поведения продуктов деления в нитридном топливе, освещены цели и задачи исследования.

**В первой главе** произведен обзор литературных данных по свойствам нитрида урана и смешанного нитрида урана и плутония – фазовые диаграммы, давления диссоциации UN и  $U_2N_3$ , а также по поведению продуктов деления в нитридном топливе. Рассматриваются работы по термодинамическому моделированию равновесного молекулярно-фазового состава продуктов деления в топливах UN, (U,Pu)N, а также в топливе с примесью кислорода. Подчеркивается, что результаты расчета равновесного состояния могут отличаться от ситуации поведения топлива в реальной эксплуатации, в описании которой необходимо учитывать неравновесные процессы.

**Во второй главе** приведено описание модели облученного смешанного уран плутониевого нитридного топлива, содержащего продукты деления.

Химические элементы урана, плутония, азота, примесей кислорода и углерода и продуктов деления распределены по 25 классам. В некоторых случаях в один класс отнесено несколько элементов со схожими химическими свойствами. Согласно модели, продукты деления генерируются в матрице топлива и далее диффундируют по зерну к поверхности согласно уравнению

$$\frac{\partial e_i(r,t)}{\partial t} = D_i \Delta e_i(r,t) + s_i(t), \quad (1)$$

где  $e_i(r,t)$  – концентрация атомов элемента  $i$  в зернах,  $D_i$  – коэффициент диффузии,  $s_i(t)$  – источник химического элемента  $i$ , возникающего в результате деления актинидов. Следует отметить, что для задачи диффузии продуктов деления зерно рассматривается в сферически симметричном приближении. В случае задачи межзеренного переноса продуктов деления зерна аппроксимируются усеченным октаэдром.

На поверхности зерен рассматривается два вида межзеренной пористости: пузыри на гранях и пузыри на ребрах зерен. В пузырях возможно формирование вторичных конденсированных фаз. Для постановки граничного условия для уравнения диффузии (1) используется квазиасимптотическое приближение, согласно которому граничные условия соответствуют равновесным концентрациям в системе, включающей зерна и пузыри на гранях зерен,

$$e_i(R_{gr}, t) \equiv e_i^{bnd}(t) = V_{gr}^{-1} E_i^{(1)tot eq} \left( \mathbf{Y}^{(1)tot eq} \left( E_N^{(12)}, E_O^{(12)}, E_C^{(12)}, E_1^{(12)}, \dots, E_{n_c-3}^{(12)}, V^{(2)}, T \right) \right), \quad (2)$$

где  $e_i^{bnd}$  – граничная концентрация для элемента  $i$ ,  $E_i^{(1)tot eq}$  – равновесная концентрация элемента  $i$  в зернах,  $\mathbf{Y}^{(1)tot eq}$  – векторное обозначение для равновесных концентраций молекул в зернах,  $E_j^{(12)}$  – концентрация элемента  $j$  в системе, объединяющей зерна и пузыри на гранях,  $R_{gr}$  – радиус зерна,  $V_{gr}$  – объем зерен,  $V^{(2)}$  – объем газовой фазы в пузырях на гранях,  $T$  – температура.

Накопление газовых компонентов в пузыре на грани приводит к стадии насыщения, после которой избыточное количество газообразных продуктов деления переносится в пузыри на ребрах. Аналогичный механизм действует при перетоке газовых компонентов из пузырей на ребрах в зазор между топливом и оболочкой твэла. Система уравнений, описывающая этот механизм, имеет вид

$$\frac{dE_i^{(12)}}{dt} = -R_i^{(2)}(\mathbf{E}^{(12)}) + S_i(t), \quad (3)$$

$$\frac{dE_i^{(3)}}{dt} = R_i^{(2)}(\mathbf{E}^{(12)}) - R_i^{(3)}(\mathbf{E}^{(3)}), \quad (4)$$

$$\frac{dE_i^{(4)}}{dt} = R_i^{(3)}(\mathbf{E}^{(3)}), \quad (5)$$

где  $\mathbf{E}^{(12)}$  – векторное обозначение концентраций элементов  $E_i^{(12)}$ ,  $\mathbf{E}^{(3)}$  – векторное обозначение для концентраций элементов  $E_i^{(3)}$  в пузырьках на ребрах,  $E_i^{(4)}$  – концентрация элементов в зазоре между топливом и оболочкой. Функция  $R_i^{(k)}(\mathbf{E}^{(k)})$  отвечает за перенос из пузырей на гранях в пузыри на ребрах и далее в зазор и имеет вид

$$R_i^{(k)}(\mathbf{E}^{(k)}) = \frac{E_i^{(k)gas}(\mathbf{Y}^{(k)gas}(\mathbf{E}^{(k)}))}{\tau^{(k)}} \delta^{(k)} \ln(\exp(\Delta^{(k)}(\mathbf{E}^{(k)})/\delta^{(k)}) + 1) \quad (6)$$

где  $\Delta^{(k)}(\mathbf{E}^{(k)}) = 1 - \bar{Y}_{crit}^{(k)gas} / \bar{Y}^{(k)gas}(\mathbf{Y}^{(k)gas}(\mathbf{E}^{(k)}))$ :  $\bar{Y}_{crit}^{(k)gas}$  – пороговое значение количества газообразных молекул,  $\bar{Y}^{(k)gas}$  – суммарное количество газообразных молекул,  $\mathbf{Y}^{(k)gas}$  – векторное обозначение для количества газообразных молекул  $Y_i^{(k)gas}$ .

Для расчета термодинамического равновесия в системе принят следующий фазовый состав:

- фаза твердого раствора продуктов деления и примесей на основе смешанного нитрида урана и плутония;
- металлическая фаза: Mo, Ru, Rh, Pd, Tc;
- вторичная нитридная фаза: Ba<sub>3</sub>N<sub>2</sub>, Sr<sub>3</sub>N<sub>2</sub>;
- интерметаллическая фаза: Ru<sub>3</sub>U, Rh<sub>3</sub>U, Pd<sub>3</sub>U;
- теллуридная фаза: BaTe, Cs<sub>2</sub>Te;
- фаза конденсированного йодида цезия: CsI;
- фаза полуторного нитрида: U<sub>2</sub>N<sub>3</sub>;
- оксидная фаза: UO<sub>2</sub>, PuO<sub>2</sub>, MoO<sub>2</sub>, RuO<sub>2</sub> и оксиды других продуктов деления;
- серая фаза: Cs<sub>2</sub>UO<sub>4</sub>, Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>, Cs<sub>2</sub>ZrO<sub>3</sub>, BaUO<sub>4</sub>, SrUO<sub>4</sub>, BaZrO<sub>3</sub>, SrZrO<sub>3</sub>, BaMoO<sub>4</sub>, SrMoO<sub>4</sub>;
- карбидная фаза: UC, PuC<sub>2</sub>, BaC<sub>2</sub>, SrC<sub>2</sub>, ZrC, LaC<sub>2</sub>, CeC<sub>2</sub>, CeC, NdC<sub>2</sub>;
- газовая фаза.



Термодинамическое моделирование равновесного молекулярно-фазового состава проводится для задания граничного условия (2) и для определения состава в пузырьках. Моделирование производится на основе решения уравнения закона действующих масс

$$A_i = K_i \prod_{j=1}^{n_e} (A_j)^{b_{ij}}, \quad (7)$$

где  $A_i$  – химическая активность компонента,  $K_i$  – константа равновесия химической реакции,  $n_e$  – количество элементов в базисе,  $b_{ij}$  – стехиометрическая матрица.

Для описания поведения азота в фазу твердого раствора помещен компонент N(s). Химический потенциал N(s) имеет вид

$$\Delta \mu_{N(s)} = \mu_{N(s)} - 0,5 \mu_{N_2(g)}^0 = 0,5 RT \ln (p_{N_2(g)}(x, T) / p_0), \quad (8)$$

где  $\mu_{N_2(g)}^0$  – химический потенциал чистого вещества  $N_2(g)$ ,  $x$  – отклонение от стехиометрии, которое задается соотношением  $x = n_{N(s)} / (n_{UN} + n_{PuN})$ ,  $p_{N_2(g)}(x, T)$  – равновесное давление азота над  $UN_{1+x}$ , которое было взято из расчетов на основе квантово-механических и молекулярно-динамических методов. В связи с тем, что  $p_{N_2(g)}(x, T)$  при заданных  $x$  и  $T$  находится путем решения системы уравнений для концентраций дефектов, была построена аппроксимация решения для удобства в программной реализации модели потенциала.

Расчет количества вторичных фаз дает возможность определить величину твердотельного распухания. В модели реализовано следующее соотношение для относительного изменения объема

$$\gamma(\%) = 100\% \times \Delta V / V, \quad (9)$$

$$\Delta V = \sum_{i \in p} x_i v_i + \sum_{i \in ss} x_i v_{UN} - V, \quad v_i = M_i \rho_i^{-1}, \quad (10)$$

где  $V$  – первоначальный молярный объем топлива,  $x_i$ ,  $v_i$  – мольная доля и молярный объем компонента  $i$ ,  $M_i$ ,  $\rho_i$  – молярная масса и плотность,  $p$  – индекс для веществ, входящих в твердые вторичные фазы,  $ss$  – индекс для веществ, входящих в твердый раствор. Вследствие того, что параметр решетки практически не меняется с ростом выгорания, компонентам твердого раствора приписывается тот же молярный объем, что и для UN, причем полагается, что  $v_{PuN} = v_{UN}$ .

Помимо диффузионной модели (1) в рамках диссертационной работы была также разработана модель, которая учитывает локальное

термодинамическое равновесие в зерне в процессе диффузии азота и продуктов деления.

Численные методы решения основной системы уравнений (3)–(5) включают метод Ньютона, где для частных производных используются их аналитические выражения.

**В третьей главе** производится тестирование разработанной термодинамической модели облученного нитридного топлива для нахождения равновесного состава путем сравнения с аналогичными расчетами из литературы. Кроме того, рассчитывается равновесное значение отклонения от стехиометрии и давление азота.

В диссертационной работе наработка продуктов деления рассчитывалась с использованием разработанного в ИБРАЭ кода BONUS. Информация о свойствах чистых веществ в основном бралась из базы данных IVTANTHERMO for Windows и из ряда других литературных источников. Для анализа фазового состава расчеты проводились при постоянном давлении в газовой фазе равном 1 атм.

Наибольший интерес представляет поведение азотосодержащих фаз. Равновесные термодинамические расчеты показывают значительное присутствие фазы  $U_2N_3$  в системе. На рис. 1 представлено изменение массовой доли полуторного нитрида, нитрида урана и нитрида плутония с ростом температуры при концентрациях химических элементов, соответствующих различным выгораниям.

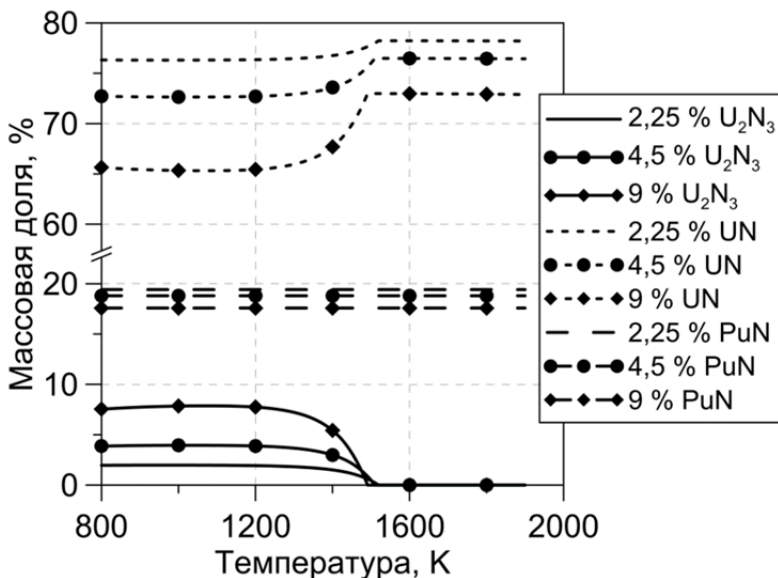


Рис. 1. Поведение азотосодержащих компонентов

Распад фазы  $U_2N_3$  наблюдается при температуре порядка 1500 К, что коррелирует с расчетами аналогичных систем из литературы. Основная доля высвобождающегося азота в результате разрушения фазы  $U_2N_3$  идет на формирование соединения UN, массовая доля которого растет в интервале от 1200 К до 1500 К (рис. 1). Содержание PuN не меняется с ростом температуры.

Рост температуры приводит к росту отклонения от стехиометрии (рис. 2). При этом при  $T \approx 1500$  К, когда фаза  $U_2N_3$  распадается, рост отклонения от стехиометрии практически останавливается и остается на уровне  $\approx 10^{-3}$ . Дальнейшее незначительное увеличение  $x$  связано с формированием интерметаллической фазы, в частности компонента  $Ru_3U$ , в процессе которого высвобождается азот.

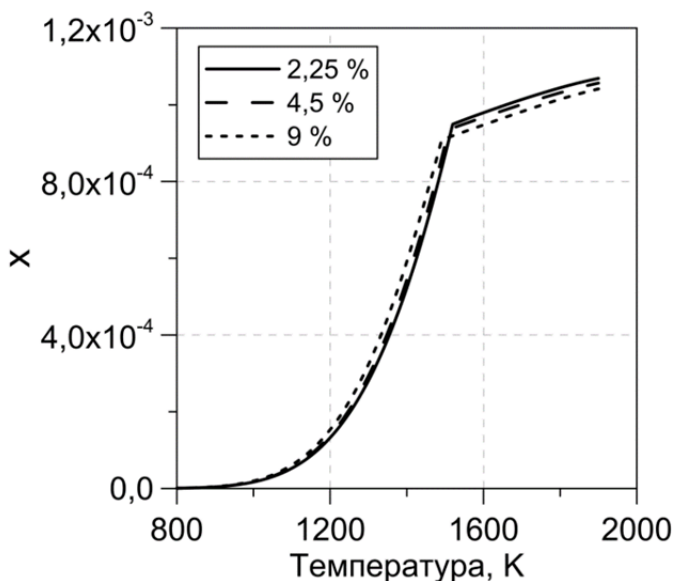


Рис. 2. Изменение отклонения от стехиометрии с ростом температуры

Частично азот с ростом температуры переходит в газовую фазу (рис. 3). Пока в системе существуют UN и  $U_2N_3$ , давление азота соответствует давлению диссоциации  $U_2N_3$ , происходящей согласно реакции, которую можно записать в упрощенном виде



Равновесное давление азота  $p_{N_2(g)}$  может быть описано формулой

$$p_{N_2(g)}(T) = p_0 \exp\left(-\frac{\Delta_r G}{RT}\right), \quad \Delta_r G = 4\Delta_f G_{UN} + \Delta_f G_{N_2(g)} - 2\Delta_f G_{U_2N_3}, \quad (12)$$

где  $p_0 = 1,01325 \cdot 10^5$  Па,  $\Delta_r G$  – изменение энергии Гиббса в реакции (11),  $R$  – универсальная газовая постоянная,  $T$  – температура,  $\Delta_f G_i$  – энергии Гиббса образования веществ. Рассчитанное давление коррелирует с экспериментальными данными по давлению диссоциации (рис. 3). Разница между экспериментальными и расчетными данными объясняется наличием плутония и продуктов деления в моделируемой системе.

При температурах выше 1500 К давление соответствует равновесному давлению азота над  $UN_{1+x}$ . Для иллюстрации этого эффекта на рис. 3 построены равновесные давления над  $UN_{1,0009}$  и  $UN_{1,0011}$ , т.е. форм нестехиометрических нитридов близких к форме  $UN_{1,001}$ , которая реализуется в термодинамическом расчете при температурах выше 1500 К (рис. 2).

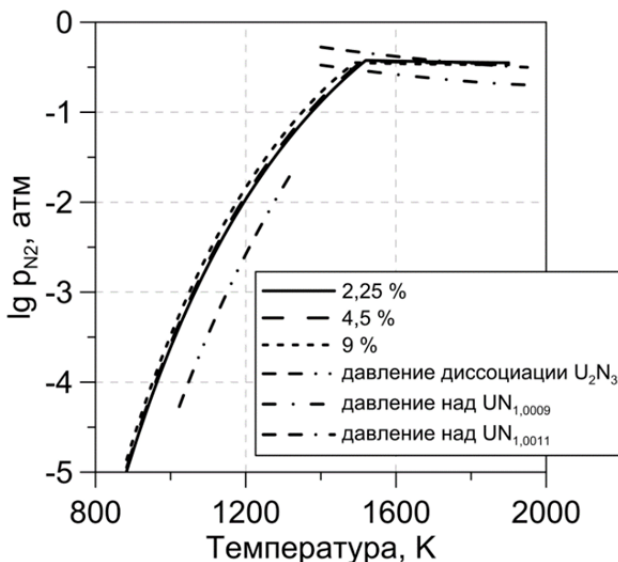


Рис. 3. Равновесное давление азота в системе

Описание поведения растворенного в матрице топлива азота дает возможность исследовать влияние примеси кислорода на отклонение от стехиометрии, а также на формирование  $U_2N_3$  и  $N_2(g)$ . Химический элемент кислорода обладает высокой активностью, что приводит к связыванию таких элементов как Ва и Sr, способных образовывать  $Ba_3N_2$  и  $Sr_3N_2$ . Кроме того, кислород формирует оксид урана, что также влечет за собой перераспределение азота. При низких температурах высвобождающийся вследствие указанных механизмов азот идет на образование фазы полоторного нитрида, что приводит к ее увеличенному содержанию по сравнению со случаем моделирования без учета примесей (рис. 4): на 2 % при выгорании 9 % тяж. ат.

Присутствие кислорода приводит к увеличению отклонения от стехиометрии и давления азота по сравнению с ситуацией без примеси. Это объясняется тем, что растущая химическая активность кислорода с

увеличением температуры приводит к большему образованию оксида урана. При высоких температурах высвобожденный в результате образования оксида урана азот остается либо в матрице топлива, либо переходит в газовую фазу. В случае отсутствия примеси рассматриваемая доля азота остается в составе  $UN$ , что приводит к несколько заниженным значениям  $x$  и  $p_{N_2(g)}$  (рис. 5, 6).

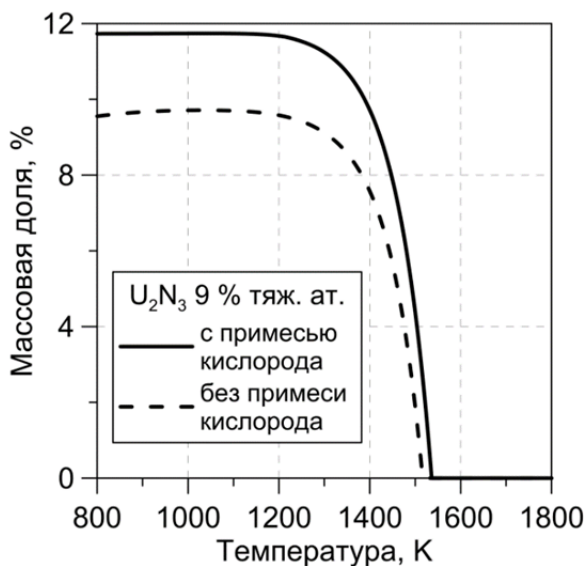


Рис. 4. Влияние примеси кислорода на содержание фазы  $U_2N_3$

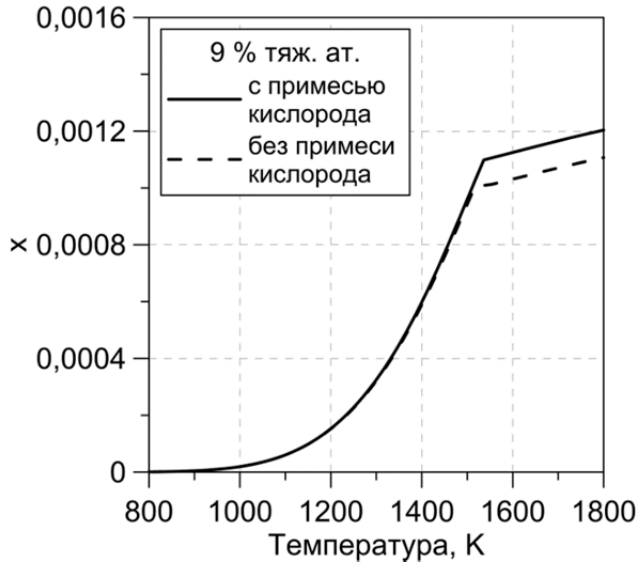


Рис. 5. Влияние примеси кислорода на отклонение от стехиометрии

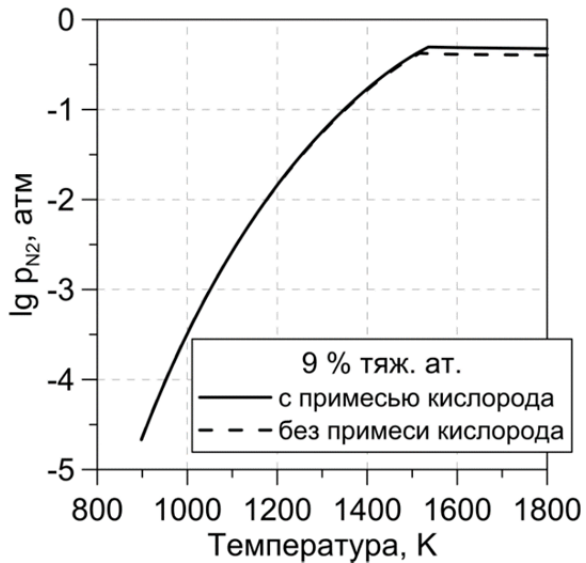


Рис. 6. Влияние примеси кислорода на давление азота

В диссертационной работе приведены расчеты по формированию всех возможных вторичных фаз, перечисленных в описании модели, как в случае примеси кислорода в топливе, так и без. Результаты работы коррелируют с аналогичными расчетами из литературы. Кроме того, исследован случай примеси углерода и показано, что в большей степени при малых концентрациях углерод остается в матрице топлива.

**В четвертой главе** производится моделирование поведения продуктов деления в эксперименте BORA-BORA, проводимом в реакторе БОР-60, по облучению смешанного нитридного топлива с различным содержанием плутония. Цель эксперимента заключалась в исследовании возможности достижения наибольшего выгорания при сохранении герметичности твэлов с гелиевым подслоем. Работа проводилась также в рамках поиска эффективных путей утилизации плутония, поэтому доля плутония в топливе достигала значительных величин – до 60 % ат. от суммарного количества актинидов. Топливо облучалось при различной линейной мощности от 42 до 55 кВт/м, что соответствует мощности проектируемых реакторов на быстрых нейтронах. Основные характеристики топлива представлены в Табл. 1.

Расчеты проводились при физических параметрах таблетки, актинидном составе, температуре в топливе и давлении под оболочкой соответствующих сценариям облучения в эксперименте BORA-BORA. Параметры облучения твэлов представлены в Табл. 2.

Таблица 1. Характеристики топлив в эксперименте BORA-BORA

Параметры топлива	$(U_{0,55}Pu_{0,45})N$		$(U_{0,4}Pu_{0,6})N$	
	твэл 1	твэл 2	твэл 3	твэл 4
Плотность, г/см <sup>3</sup>	12,7	12,15	12,1	12,16
Плотность, % от теоретической	85	84,8	84,4	85
Пористость по микроструктуре, %	15	15	15	15
Диаметр таблетки, мм	$5,9^{-0,1}$	$5,9^{-0,1}$	$5,9^{-0,1}$	$5,9^{-0,1}$
Высота топливного столба, мм	451	452	449	450
Средний размер зерна, мкм	30-35	30-35	30-35	30-35



Продолжение Табл. 1

Содержание Pu, U и примесей, % по массе	Pu 42 Pu+U 93,8 O 0,1 C 0,01	Pu 41,8 Pu+U 93,7 O 0,15 C 0,01	Pu 56,5 Pu+U 94,15 O <0,15 C <0,01	Pu 56,5 Pu+U 94,15 O <0,15 C <0,01
---	---------------------------------------	--	--	---

Таблица 2. Параметры облучения твэлов в эксперименте BORA-BORA

Топливо	$(U_{0,55}Pu_{0,45})N$		$(U_{0,4}Pu_{0,6})N$	
	1	2	1	2
Этап облучения	1	2	1	2
Номер твэла	1	2	3	4
Длительность облучения, эфф. сут.	514	900	514	900
Максимальное выгорание, % тяж. ат.	5,4	9,4	7,0	12,1
Среднее выгорание, % тяж. ат.	4,7	8,2	6,1	10,6
Максимальная линейная мощность, кВт/м	41,9	41,9	54,5	54,5
Максимальная температура оболочки, К	861	840	860	877
Повреждающая доза, сна	23	43	23	43

Корректное сравнение рассчитанного поведения продуктов деления с экспериментальными данными возможно при правильном вычислении их количественного содержания в топливе, что обеспечивается надежным описанием выгорания. На рис. 7 представлено сравнение рассчитанных и экспериментальных максимальных выгораний, которые достигаются в центральной части твэлов. Выгорание описывается с точностью до 4 %.

На рис. 8, 9 представлены экспериментальные и рассчитанные усредненные по радиальным слоям таблетки распределения урана и плутония для двух видов топлива  $(U_{0,4}Pu_{0,6})N$ ,  $(U_{0,55}Pu_{0,45})N$ .

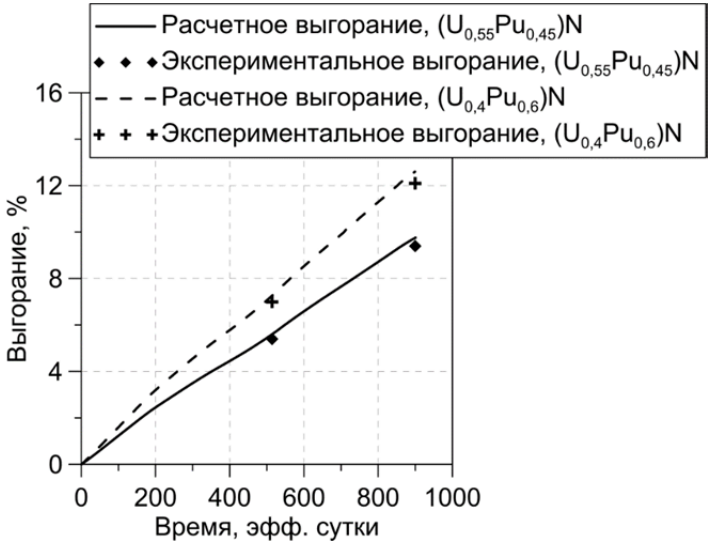


Рис. 7. Сравнение расчетного и экспериментального выгораний для топлив  $(U_{0,4}Pu_{0,6})N$  и  $(U_{0,55}Pu_{0,45})N$

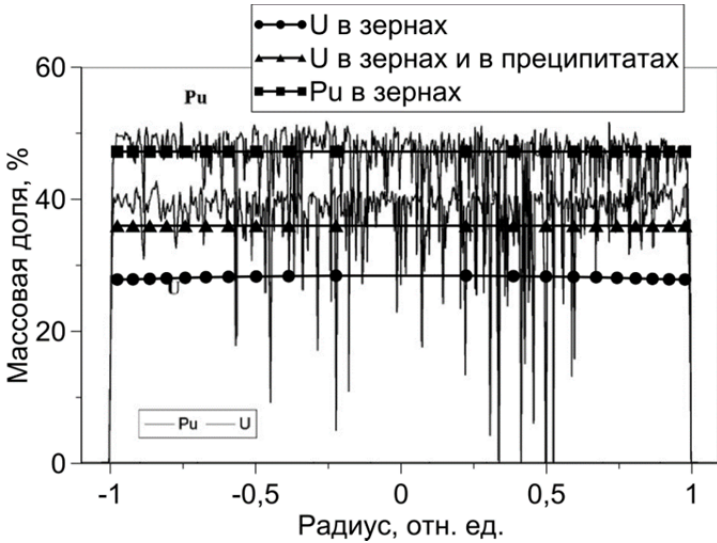


Рис. 8. Распределение U и Pu по радиусу таблетки для топлива  $(U_{0,4}Pu_{0,6})N$

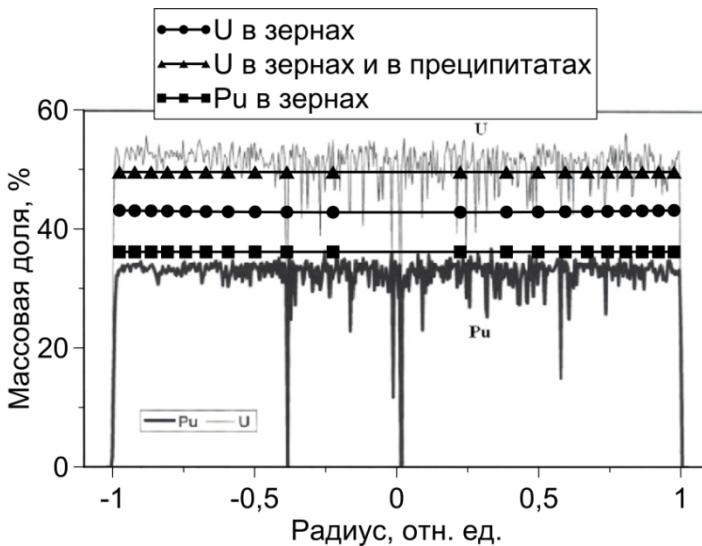


Рис. 9. Распределение U и Pu по радиусу таблетки для топлива  $(U_{0,55}Pu_{0,45})N$

В профиле, полученном с использованием электронного микроскопа для U и Pu, в большей степени наблюдаются скачки вниз от среднего значения. Это связано с наличием пор и трещин, возможно, также с наличием вторичных фаз, где массовая доля этих элементов ниже. Согласно модели, уран может находиться помимо матрицы топлива в фазе полупереходного нитрида и в интерметаллической фазе. В соединении  $Ru_3U$ , входящем в интерметаллическую фазу, массовая доля урана составляет  $\approx 44\%$ , примерно такая же величина соответствует соединениям  $Rh_3U$  и  $Pd_3U$ , что меньше доли урана, находящегося в топливной матрице. Аналогичная тенденция для  $U_2N_3$ : в чистых фазах  $U_2N_3$  и  $UN$  доля урана в фазе  $U_2N_3$  на 2% масс. ниже, чем доля урана в  $UN$ .

Вычисленный профиль урана, где в расчет массовой доли в радиальной ячейке входил уран, находящийся как в матрице топлива, так и во вторичных фазах, на 2–3% масс. ниже экспериментального для двух видов топлива, что объясняется несколько большей степенью выгорания урана в моделировании. На рис. 8, 9 также представлена массовая доля урана, находящегося только в матрице, в этом случае профиль ниже на 8–9%.

В разработанной модели плутоний не входит в состав конденсированных фаз, а также практически не участвует в процессах переноса. Таким образом, рассчитанный профиль плутония определяется

степень выгорания топлива. Такое моделирование плутония с точностью до 7 % масс. описывает экспериментальное распределение плутония по радиусу таблетки.

В диссертационной работе рассматриваются поведения продуктов деления Zr, Pd, Xe, Mo, Cs, Nd. На рис. 10, 11 представлены радиальные профили распределения элементов Zr и Pd. Элемент Zr относится к тем продуктам деления, которые высоко растворимы в матрице топлива, и соответственно, обладает слабыми транспортными свойствами и не образуют вторичные фазы. В этом случае профиль, описание которого производится моделью с точностью до 10 %, определяется в основном наработкой этого элемента.

Элемент Pd относится к металлам. В модели Pd распределяется по матрице топлива и вторичным фазам: металлической и интерметаллической, причем рассматриваемый продукт деления практически не выходит из топлива. Это ведет к тому, что профиль элемента Pd, входящего, как в матрицу топлива, так и во вторичные фазы, имеет форму горизонтальной прямой. При приближении к центру таблетки температура растет, что приводит к формированию вторичных фаз в большей степени, чем на краю таблетки, где температура ниже. Отсюда в центральной части содержание Pd в матрице топлива ниже, чем на краю таблетки, что коррелирует с экспериментальным профилем.

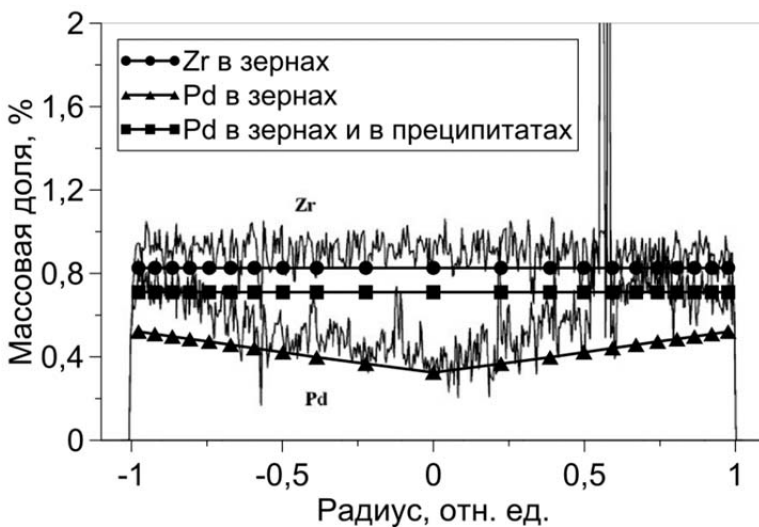


Рис. 10. Распределение Zr и Pd по радиусу таблетки для топлива  $(U_{0,4}Pu_{0,6})N$

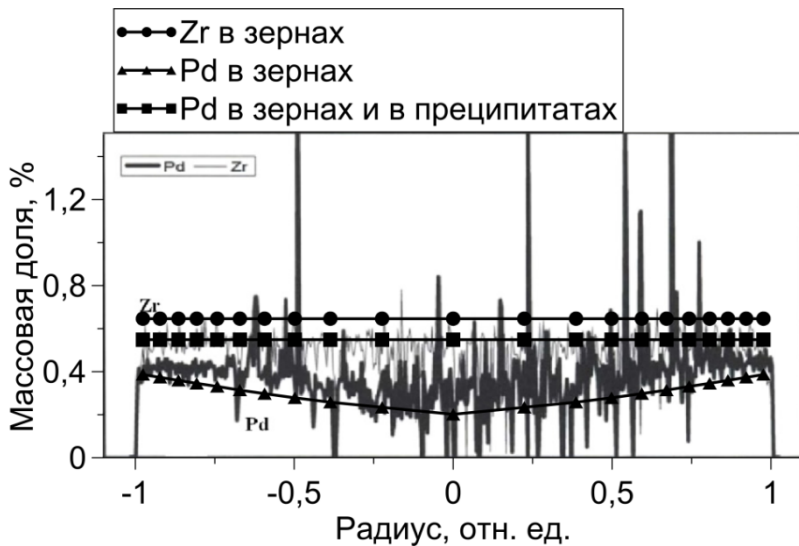


Рис. 11. Распределение Zr и Pd по радиусу таблетки для топлива  $(U_{0,55}Pu_{0,45})N$

## Основные результаты

В результате выполнения диссертационной работы была поставлена и решена задача описания поведения продуктов деления в облученном смешанном уран-плутониевом нитридном топливе, а именно:

1) Построена термодинамическая модель нитрида урана и плутония с продуктами делениями и примесями азота и кислорода. Разработан равновесный молекулярно-фазовый состав. Реализован программный модуль, осуществляющий решение задачи определения равновесного состава.

2) Построена модель химического потенциала азота в матрице нитридного топлива на основе данных о равновесном давлении газообразного азота, полученном на основе квантово-механических и молекулярно-динамических методов.

3) Проведено объединение термодинамической модели нитридного топлива с существующей кинетической моделью описания поведения топлива под облучением.

4) Разработанная модель имплементирована в программный код и является составной частью твэльного кода БЕРКУТ.

5) Проведено сравнение расчетов по термодинамической модели с существующими расчетами из литературы, показана корректность работы модуля.

6) Смоделировано распределение продуктов деления в эксперименте BORA-BORA, результаты расчетов коррелируют с измерениями профилей продуктов деления в топливной таблетке.

## **Публикации по теме диссертации**

### **ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ**

- 1) Долгодворов А.П., Озрин В.Д., "Особенности эволюции микроструктуры нитридного топлива на начальных этапах выгорания", Труды 57-й научной конференции МФТИ с международным участием, посвященной 120-летию со дня рождения П.Л. Капицы. 24-29 ноября 2014 года. Москва-Долгопрудный-Жуковский, 2014. Проблемы современной физики. Стр. 160.
- 2) Dolgodvorov A.P., Ozrin V.D., "Modeling of nitride fuel under irradiation", Nucleus 2015. New Horizons in Nuclear Physics, Nuclear Engineering, Femto- and Nanotechnologies. June 29 - July 3, 2015, Peterhof, Saint-Petersburg, p. 276.
- 3) Долгодворов А.П., Озрин В.Д., "Эволюция фазового состава и выход продуктов деления из облученного нитридного топлива", Препринт ИБРАЭ № ИБРАЭ-2015-01. Сборник трудов XVI научной школы молодых ученых ИБРАЭ РАН, Москва, 2015, с. 72.
- 4) Долгодворов А.П., Озрин В.Д., "Физико-химические аспекты разработки термохимического программного модуля для описания поведения смешанного нитридного топлива", Сборник трудов XVII научной школы молодых ученых ИБРАЭ РАН, Москва, 2016, с. 62.
- 5) Долгодворов А.П., "Исследование фазового состава в процессе выгорания нитридного топлива", Тезисы докладов симпозиума "Чернобыль: 30 лет спустя" и международной научной конференции студентов, аспирантов и молодых ученых "Ломоносов-2016", подсекция радиохимия и радиоэкология, Москва, 2016, с. 40.
- 6) Starikov S.V., Kuksin A.Yu., Smirnova D.E., Lunev A.V., Tseplyaev V.I., Korneva M.A., Kolotova L.N., Kostyuchenko T.S., Dolgodvorov A.P., Polovnikov P.V., Ozrin V.D., Tarasov V.I., "Multiscale computer modeling of nuclear fuel properties at

radiation and thermal impacts", in International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development (FR-17), Report 234.

Публикации в журналах, рекомендованных ВАК, а также в журналах, включенных в глобальный индекс цитирования Scopus:

- 7) Долгодворов А.П., "Особенность теоретического описания выхода продуктов деления из нитридного топлива", Вестник национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», 2016, том 5, № 5, с. 439–444.
- 8) Dolgodvorov A.P., Ozrin V.D., "Mechanistic approach for nitride fuel evolution and fission product release under irradiation", Journal of Physics: Conference Series, 781 (2017) 012010.
- 9) Starikov S.V., Kuksin A.Yu., Smirnova D.E., Dolgodvorov A.P., Ozrin V.D., "Multiscale modeling of uranium mononitride: point defects diffusion, self-diffusion, phase composition", Defect and Diffusion Forum (Defect and Diffusion Phenomena in Materials for Nuclear Technologies), 375 (2017) 101.

Долгодворов Алексей Павлович

Моделирование поведения продуктов деления в нитридном топливе

Автореферат  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата технических наук

Подписано в печать \_\_\_\_\_2017  
Формат 60 × 84 1/16. Усл. печ. л. 1,25. Уч.-изд. л. 1,05.

Тираж 110 экз.  
Печать на аппарате Rex-Rotary. ИБРАЭ РАН.  
115191, Москва, ул. Б. Тульская, 52  
Телефон: 8-495-955-22-66