

На правах рукописи



**РУСИНКЕВИЧ Андрей Александрович**

**ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В ПЕРЕНОСЕ ПРОДУКТОВ  
ДЕЛЕНИЯ В МИКРОТОПЛИВЕ ПРИ ГЛУБОКИХ ВЫГОРАНИЯХ**

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

Автореферат  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата технических наук

Москва – 2016

Работа выполнена в Федеральном Государственном бюджетном учреждении Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт».

Научный руководитель: **Иванов Александр Сергеевич**,  
доктор физико-математических наук, профессор,  
начальник отдела НИЦ «Курчатовский институт».

Официальные оппоненты: **Лиханский Владимир Валентинович**,  
доктор физико-математических наук, профессор,  
начальник отдела «Государственного научного  
центра Российской Федерации Троицкого института  
инновационных и термоядерных исследований»  
(ФГУП «ГНЦ РФ ТРИНИТИ»)

**Любимов Дмитрий Юльевич**,  
кандидат технических наук, ведущий научный  
сотрудник «научно-исследовательского института  
научно-производственного объединения «Луч»  
(ФГУП «НИИ НПО «ЛУЧ»)

Ведущая организация: Акционерное Общество «Опытное Конструкторское  
Бюро Машиностроения им. И.И. Африкантова»,  
г. Нижний Новгород.

Защита состоится «25» октября 2016 г. в 14 ч. 00 мин. на заседании  
диссертационного совета Д 520.009.06 на базе НИЦ «Курчатовский институт», по  
адресу: 123182 Россия, Москва, пл. Академика Курчатова, д. 1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЦ «Курчатовский  
институт» и на сайте [www.nrcki.ru](http://www.nrcki.ru).

Автореферат разослан «\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2016 г.

Ученый секретарь диссертационного совета,  
кандидат физико-математических наук



А.С. Колокол

## **Общая характеристика работы**

### **Актуальность темы исследования**

Разработка новых видов микротоплива для реакторов ВТГР, обеспечивающих глубокое выгорание, требует существенного развития наших знаний. Во многих случаях, решение об эксплуатационной надежности микротвэлов не может быть принято на основе имеющегося опыта. Проведение прямых экспериментов, для получения необходимой информации, естественно, желательно, но сопряжено с большими сложностями и затратами. В связи с этим становится особенно актуальным развитие методов прогнозирования, основанных на использовании более глубоких физических и физико-химических моделей поведения топлива при глубоком выгорании и разработка соответствующих расчетных кодов. Одним из важных аспектов проблемы является исследование изменения морфологии состава и структуры топливных частиц в процессе практически полной трансформации кернов. Сюда же примыкает и проблема выхода ПД как из разрушенных, так и не разрушенных микротвэлов. Ключевую роль в этом деле играет расчет термодинамики микротоплива.

Моделирование транспорта ПД необходимо для определения эксплуатационной надежности микротоплива, проектирования систем безопасности реакторных установок в рабочем режиме и аварийных ситуациях.

Учёт эффектов, обусловленных глубоким выгоранием в программах, рассчитывающих перенос ПД, позволяет скорректировать и уточнить результаты моделирования.

Несмотря на то, что тематика микротоплива изучается с 1970-х годов, за последнее время проведено множество исследований, посвященных модернизации МТ и транспорту ПД в МТ. Особенно активно идёт работа в этом направлении в таких странах как США, Германия, Япония, ЮАР, Китай и Россия.

## **Цели и задачи работы**

Целью работы является расчетно-теоретическое исследование особенностей химического и фазового состава микротоплива на основе плутониевых кернов и выхода ПД из МТ при глубоких выгораниях.

Задачами работы являются:

- 1) Анализ поведения задерживаемой доли элементов, участвующих в диффузии в зависимости от времени.
- 2) Разработка физ.-мат. модели и программы расчета кинетики выхода продуктов деления из микротвэлов, учитывающих эффекты, химического связывания, ограниченной растворимости и термодинамических скачков.
- 3) Расчетные исследования влияния связывания продуктов деления и компонентов топлива в устойчивые химические соединения на кинетику выхода ПД при глубоких выгораниях.
- 4) Расчетные исследования влияния ограниченной растворимости продуктов деления в материалах покрытий МТ на кинетику выхода ПД при глубоких выгораниях.

## **Научная новизна работы**

В работе спрогнозировано нестандартное поведение цезия в МТ без геттера кислорода и дано непротиворечивое объяснение этому эффекту.

Разработана новая физ.-мат. модель и программа расчета выхода ПД из МТ при глубоких выгораниях, учитывающая эффекты химического связывания и ограниченной растворимости ПД.

Исследовано влияние геттера кислорода на выход Cs из МТ.

Показано, что ограниченная растворимость существенно влияет на профиль концентраций ПД в МТ и их выход практически во всем диапазоне рабочих температур.

## Теоретическая и практическая значимость результатов работы

В микротопливе без геттера кислорода расчетным путем обнаружено аномальное поведение задерживаемой доли цезия. Этот эффект может играть заметную роль при обосновании безопасности реакторных установок.

Разработана программа, рассчитывающая перенос ПД в МТ, в которой корректно учтены эффекты задерживаемой доли и ограниченной растворимости, что позволяет моделировать поведение топлива при глубоких выгораниях.

Обосновано использование измеряемых экспериментально эффективных коэффициентов диффузии для расчёта транспорта ПД.

Результаты работы следует использовать при проведении дальнейших исследований переноса ПД в МТ. Накопив данные модельных экспериментов, получим инструмент для моделирования поведения ПД при больших температурах и выгораниях, как в рабочих, так и в аварийных условиях.

## Положения, выносимые на защиту

1) Для микротоплива с плутониевыми кернами предсказано аномальное поведение задерживаемой доли цезия при отсутствии геттера кислорода. До выгорания  $\sim 25\%$  *FIMA* задерживаемая доля практически не изменяется. С  $\sim 25\%$  до  $\sim 50\%$  *FIMA* наблюдается рост задерживаемой доли за счёт образования устойчивых соединений ( $Cs_2CO_3$ ,  $CsI$ ,  $CsBr$ ,  $Cs_2O$  и др.). При больших выгораниях несвязанного Cs в керне практически не остаётся, и задерживаемая доля оказывается близка к 1.

2) Проведена разработка нового кода расчета выхода ПД из микротвэлов «FP-Kinetics». Этот код позволяет учесть влияние эффектов химического связывания, ограниченной растворимости и термодинамических скачков, что особенно важно при анализе задач с глубоким выгоранием ядерного топлива. С помощью программы «FP-Kinetics» получены профили концентраций ряда ПД в МТ, рассчитаны потоки на границе МТ и интегральные выходы ПД из МТ.

3) На базе кода «FP Kinetics» исследовано влияние геттера кислорода на выход Cs из МТ. Обнаружено, что, несмотря на аномальное поведение задерживаемой доли Cs в микротопливе без геттера кислорода, отличие в интегральном выходе Cs в МТ с геттером и без геттера кислорода не велико, если время наблюдения не превышает 920 суток. Присутствие геттера кислорода не приводит к какому-либо заметному росту выхода цезия из МТ независимо от температуры.

4) Показано, что ограниченная растворимость существенно влияет на профиль концентраций и выход ПД из МТ практически во всем диапазоне рабочих температур. Наибольшего влияния эффект ограниченной растворимости в случае серебра достигает при температуре  $\sim 1400\text{K}$ . При данной температуре учёт исследуемого эффекта снижает поток атомов серебра в конечной точке выбранного временного интервала (920 дней) в  $\sim 12$  раз, а интегральный выход в  $\sim 7$  раз.

### **Степень достоверности результатов**

Достоверность полученных результатов основана на двух положениях.

Во-первых, тестирование используемых термодинамических кодов расчета фазового и химического состава на экспериментальных данных, полученных для системы Pu-C-O, показало достаточно хорошую сходимость результатов в широком диапазоне температур.

Во-вторых, разработанная программа расчета кинетики выхода ПД основана на базе апробированных физических моделей процессов переноса.

Вместе с тем необходимо отметить, что для более надежного прогнозирования химического и фазового состава такой сложной многокомпонентной системы, как выгорающее топливо, необходимо проведение модельных экспериментов с использованием набора стабильных изотопов ПД. Кроме того, необходимо получение дополнительной экспериментальной информации о пределах растворимости продуктов деления в покрытиях МТ.

### **Апробация работы**

Основные положения диссертационной работы докладывались на российских и международных конференциях: 4<sup>th</sup> International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology HTR 2008 (Washington DC, USA, 2008), 7-й и 9-й Курчатовской молодежной научной школе (Москва, 2009 и 2011 гг.), 5<sup>th</sup> International Conference on High Temperature Reactor Technology HTR 2010 (Прага, Чехия, 2010), XIX International Conference on Chemical Thermodynamics in Russia RRCT-2013, (Москва, МИТХТ, 2013), 7<sup>th</sup> International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology HTR 2010 (Weihai, China, 2014), 6-ом отраслевом семинаре по дисперсионным твэлам в НИИ НПО “Луч”, 2014г.

### **Публикации**

Результаты, полученные в ходе работы над диссертацией, опубликованы в 11 печатных работах, включая 5 статей в рецензируемых научных журналах (список публикаций приведен в конце автореферата).

### **Структура и объём диссертации**

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения и списка литературы. Работа содержит 135 страниц, 37 рисунков, 19 таблиц. Библиография включает 91 наименование.

### **Личный вклад автора**

Автор диссертации принимал участие в постановке научных задач. Автором проводилась разработка физ.-мат. моделей процессов переноса продуктов деления в микротопливе при глубоких выгораниях.

На основе построенной физ.-мат. модели автор разработал компьютерный код FP-Kinetics расчета кинетики выхода продуктов деления из МТ, учитывающий эффекты химического связывания и ограниченной растворимости.

Автором выполнены расчетно-аналитические исследования по объяснению ряда физических явлений, в том числе: аномального поведения задерживаемой доли цезия при отсутствии геттера кислорода; отсутствии заметного влияния этого эффекта на выход продуктов деления на временах меньше исследуемого промежутка (920 дней); скачков концентраций при учете эффекта ограниченной растворимости.

Все представленные в диссертации результаты получены автором или при его непосредственном участии. На основании результатов исследования и их анализа автором сформулированы и обоснованы выводы и заключения, вошедшие в диссертацию.

### **Содержание работы**

**Во введении** описываются некоторые особенности транспорта продуктов деления (ПД) в микротвэлах (МТ) с TRISO покрытием, обосновывается актуальность темы, изложены научная новизна, практическая значимость работы, сформулированы цели и задачи работы, приведены основные положения, выносимые на защиту, а также обосновывается достоверность результатов работы.

**В первой главе** выполнен обзор литературных данных по структуре и функциональным особенностям микротоплива ВТГР, приведены их преимущества и недостатки, описано назначение МТ и слоёв покрытий, представлены результаты современного состояния разработки и испытаний этого топлива. Рассмотрена область работоспособности МТ, приведены данные экспериментов по проверке работоспособности оксидного и карбидного топлива с TRISO покрытием в рабочих и аварийных условиях, которые подтверждают возможность создания качественного топлива, а также надёжность SiC слоя как



барьера для ПД. Показано положительное влияние геттера кислорода на увеличение предела работоспособности МТ. Описана проблема переноса ПД через слои покрытий в микротопливе, в том числе механизмы миграции ПД через материалы покрытий. Подробно описан перенос ПД через SiC слой – как основной барьер, предотвращающий выход большинства ПД из МТ, а также взаимодействие ПД с SiC слоем. Проведен анализ существующих данных по кинетике выхода ПД из МТ, в том числе коэффициентов диффузии различных ПД в топливных ядрах и материалах покрытий. Представлен краткий анализ существующих кодов расчета переноса продуктов деления в микроТВЭлах (TRAFIC, PARFUME и др.) и отмечены их недостатки, не позволяющие их использовать при расчете топлива с глубоким выгоранием. В частности, показано, что существующие программы вынуждены использовать поправочные коэффициенты ( $10^{-10}$ – $10^{-3}$ ) для совпадения результатов расчётов с результатами экспериментов. По всей видимости, это связано с тем, что эти модели не учитывают важные эффекты, влияющие на диффузию ПД: эффекты задерживаемой доли и ограниченной растворимости.

**Во второй главе** поставлена задача учёта влияния эффектов задерживаемой доли и ограниченной растворимости при моделировании переноса ПД в МТ.

В параграфе 2.1 приведен алгоритм расчёта выхода ПД из МТ. Описаны эффекты, оказывающие существенное влияние на транспорт ПД в МТ – задерживаемая доля и ограниченная растворимость.

Задерживаемая доля – это химически связанная в топливе доля радионуклида, не участвующая в диффузии через оболочки. Состав выходящих радионуклидов при этом ограничен, в основном, металлическими ПД и актинидами. Для одних ПД, например, металлов Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, практически не участвующих в химических взаимодействиях, задерживаемые доли близки нулю. Но для многих других радионуклидов они могут быть, как показывают расчёты равновесного химического состава топлива, много больше нуля. Это зависит не только от глубины выгорания и температуры, но и от исходного состава топлива и структуры МТ (урановое, плутониевое или смешанное топливо,

исходная степень окисления топлива, концентрации геттеров кислорода и других добавок, состав покрытий, величина свободного объёма, аккумулирующего газы), а также от оставшегося на данный момент в керне количества радионуклидов. Модель задерживаемой доли позволяет на базе равновесных термодинамических расчетов учесть влияние этого эффекта на перенос ПД в неповрежденных МТ.

Растворимость ряда элементов в некоторых материалах, в частности, в карбиде кремния, весьма низка. При малых концентрациях компонентов, когда концентрации ПД в материалах покрытий МТ меньше соответствующих пределов растворимости, концентрационный профиль рассматриваемого ПД остаётся непрерывным. Однако с ростом выгорания, концентрация ПД в МТ растёт и может наступить момент, когда концентрация какого-либо из компонентов превысит предел растворимости в том или ином материале покрытия. В таком случае график концентрации рассматриваемого компонента претерпевает разрыв. Во внутренней области МТ концентрация продолжает расти по мере выгорания топлива, а на границе со стороны материала с низкой растворимостью концентрация не может увеличиться и остаётся постоянной, равной предельной растворимости при данной температуре. Эффект ограниченной растворимости значительно влияет на выход продуктов деления в сторону его уменьшения, особенно при высоких значениях выгорания топлива. Следовательно, это явление должно найти свое отражение в компьютерных программах по транспорту ПД.

В параграфе 2.2 приведены принципы расчета термодинамики многокомпонентных гетерогенных систем. Дано описание программы и базы данных ИВТАНТЕРМО. Показано, что достоверность результатов термодинамического моделирования зависит от целого ряда факторов. Несмотря на это, моделирование позволяет получить важную информацию без проведения дорогостоящих и опасных экспериментов.

**В третьей главе** на основе данных нейтронно-физического расчёта представлены результаты исследования термодинамики двух типов микротвэлов (с геттером и без геттера кислорода) с плутониевым топливом при различных условиях. В расчётах химического и фазового состава топлива рассматривалась

замкнутая термодинамическая система, представляющая собой внутреннюю область микротвэла и состоящая из ядра и буферного слоя пироуглерода ВРyС. Для проведения термодинамического анализа МТ необходимы следующие начальные данные: исходный элементный химический состав, полученный из нейтронно-физического расчёта, геометрические размеры ядра и слоёв МТ, пористость материалов, входящих в термодинамическую систему. В параграфе 3.4 приведена выбранная расчётная модель, в которой все конденсированные компоненты разделены на 2 раствора и отдельные фазы для остальных компонентов. В состав первого раствора включены все окисные соединения, иодиды и бромиды. В состав второго раствора включены все карбиды, теллуриды и металлы. Более подробное обоснование расчётной модели возможно на основе дополнительной информации, которая может быть получена при экспериментальном моделировании рассматриваемой системы. Теплоты растворения компонентов растворов приняты равными нулю (модель идеальных растворов). Расчётный интервал температур  $1073 \div 1673 \text{ K}$ . Расчётный интервал глубины выгорания топлива  $0 \div 80 \%$  FIMA. Все расчёты проведены для неповрежденных МТ при условии  $V = \text{const}$  с заданным начальным значением свободного объёма. В параграфе 3.5 приведены результаты расчета задерживаемой доли для 11 элементов – продуктов деления: *Ag, Ce, Cd, Cs, La, Mo, Pd, Ru, Sr, Te, Y* и плутония. Показано, что задерживаемая доля *Ce, Pu, Sr, Y* в неповрежденных МТ равна единице, то есть эти элементы полностью связываются и не выходят из неповрежденных микротвэлов как первого, так и второго типа. Задерживаемая доля *Ag, La, Ru, Pd* равна нулю для рассмотренных типов микротвэлов во всём рассматриваемом температурном диапазоне, то есть эти элементы не вступают в какие-либо соединения и могут выходить из системы. Задерживаемая доля некоторых компонентов может, как увеличиваться (*Te* – рисунок 1), так и уменьшаться (*Cd, Mo* – рисунки 2 и 3 соответственно) при введении геттера кислорода.

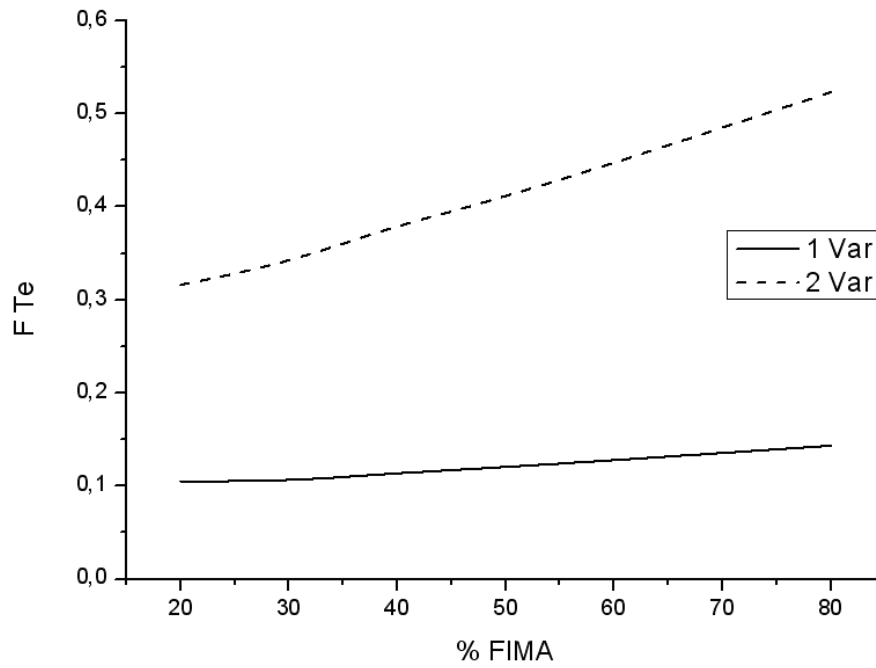


Рисунок 1 – Зависимость задерживаемой доли Te от выгорания при температуре 1273К для двух вариантов микровзводов

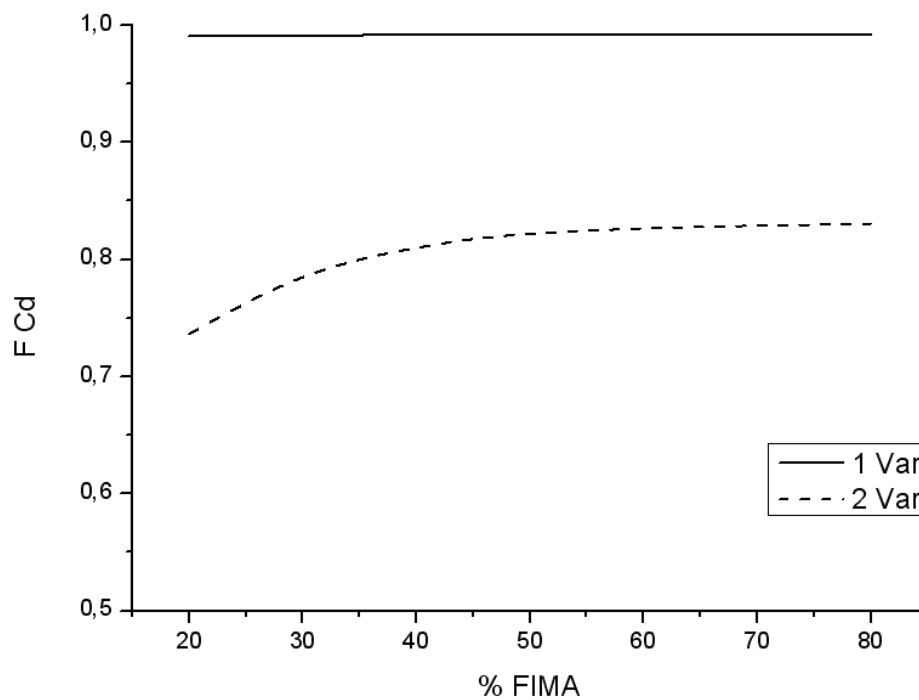


Рисунок 2 – Зависимость задерживаемой доли Cd от выгорания при температуре 1273К для двух вариантов микровзводов

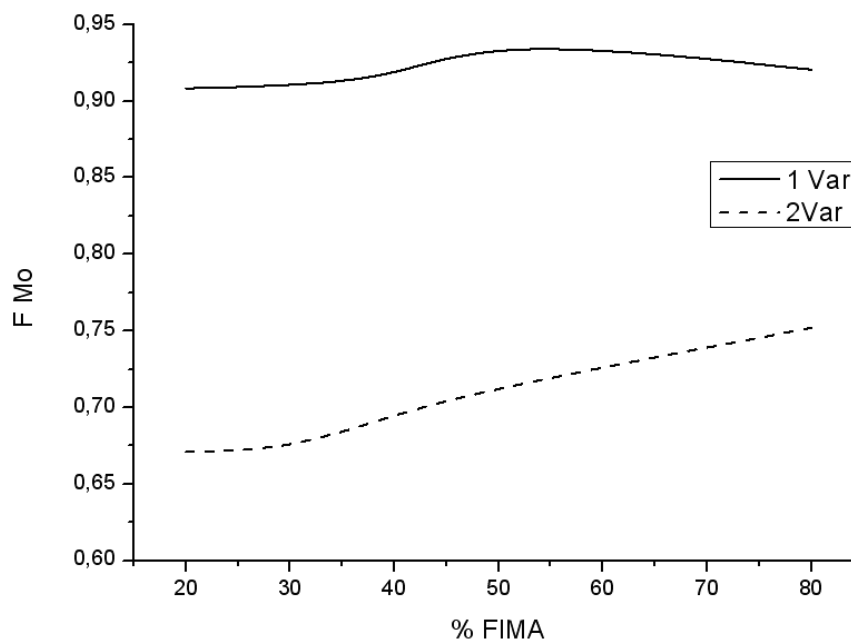


Рисунок 3 – Зависимость задерживаемой доли Мо от выгорания при температуре 1273К для двух вариантов микротвэлов

В микротопливе, не содержащем геттер кислорода, обнаружен резкий рост задерживаемой доли цезия и, соответственно, уменьшение свободного цезия при выгорании ~ 26% FIMA и более (рисунок 4). Это приводит к существенной нелинейности зависимости задерживаемой доли от выгорания и должно служить причиной резкого снижения выхода  $Cs$  из МТ. На рисунке 5 для МТ без геттеров и разбавителей (1 вариант) показана задерживаемая доля цезия, чистый цезий и степень окисления плутония в зависимости от выгорания. При выгорании около 26% FIMA (для температуры 1273К) обнаружен резкий рост задерживаемой доли цезия и, соответственно, уменьшение свободного цезия. По всей видимости, это связано с тем, что степень окисления плутония повышается до уровня  $O/Pu = 1.95$  и выше, образуется свободный кислород, которого оказывается достаточно для связывания цезия в карбонат  $Cs_2CO_3$ . С ростом выгорания до 45% FIMA (1273К) цезий полностью задерживается. В случае микротвэлов, содержащих геттер кислорода, образование карбоната цезия не происходит и задерживаемая доля от выгорания практически не зависит.

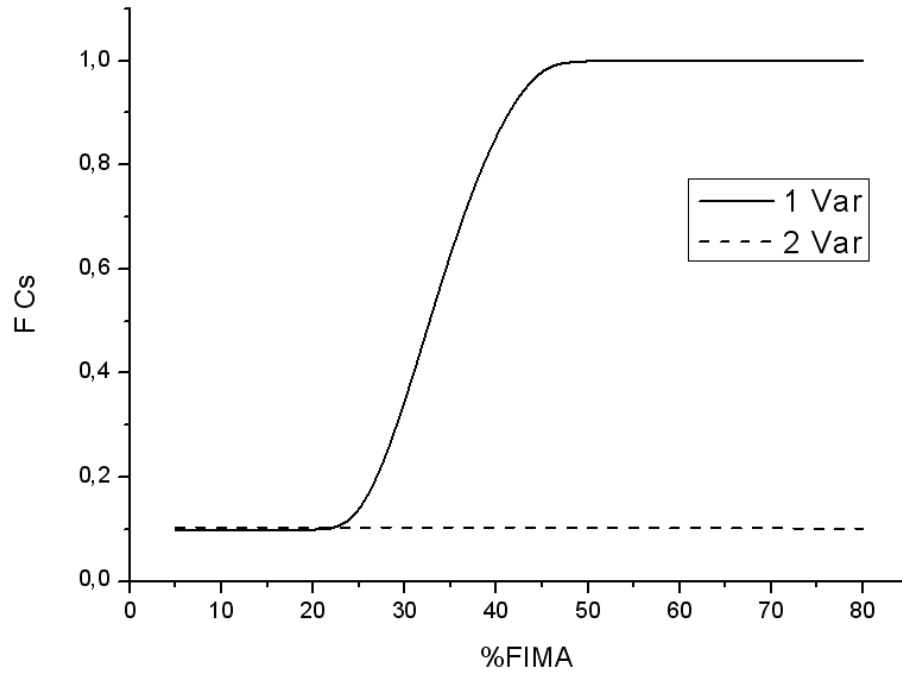


Рисунок 4 – Задерживаемая доля цезия в зависимости от выгорания для двух типов исследуемых МТ при температуре 1273К

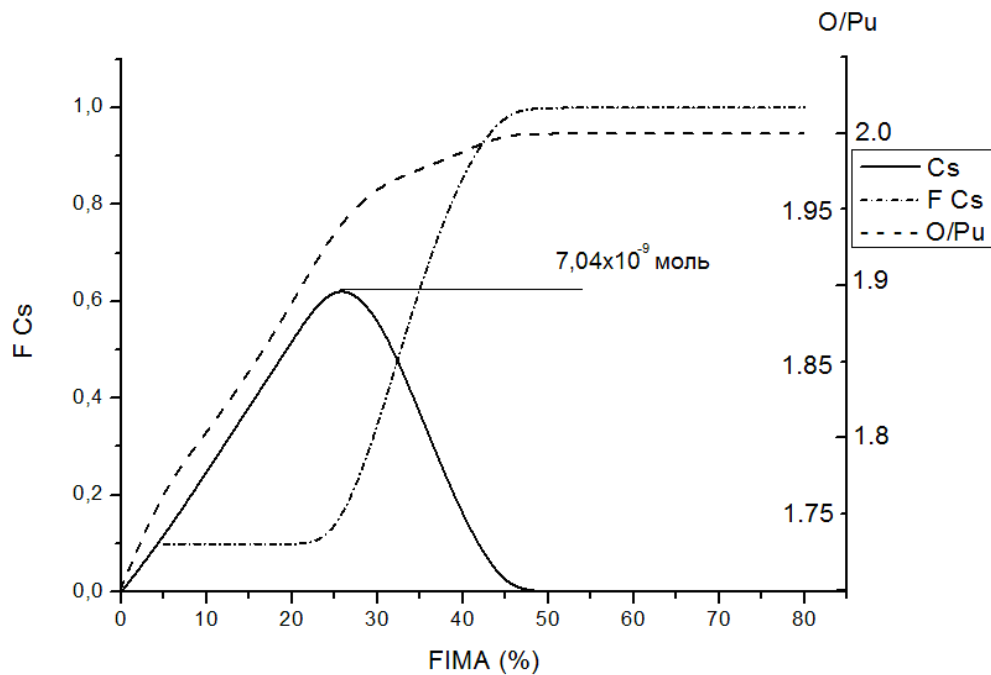


Рисунок 5 – Задерживаемая доля цезия (F Cs), чистый цезий (Cs) и степень окисления плутония (O/Pu) в зависимости от выгорания для микротвэла без геттера кислорода

**В четвертой главе** проведен анализ влияния эффекта задерживаемой доли на измеряемые в опыте эффективные коэффициенты диффузии ПД в ядрах микро топлива ВТГР. Отмечены возникшие противоречия в интерпретации полученных ранее результатов. Для разрешения этих противоречий проведено исследование влияния эффекта задерживаемой доли на измеряемые в опыте эффективные коэффициенты диффузии.

Показано, что связывание части диффундирующего компонента не сказывается на коэффициентах диффузии диффундирующего компонента, но приводит к существенно другому результату по выходу ПД. Поэтому в исследованиях переноса ПД необходимо использовать известные эффективные коэффициенты диффузии и вместе с тем определять задерживаемую долю химически связанного компонента из термодинамических расчетов. Таким образом, коэффициенты диффузии, измеряемые в эксперименте по тангенсу угла наклона временной зависимости потока, в рассматриваемом приближении не зависят от задерживаемой доли диффундирующего компонента, и отпадает необходимость модификации базы данных, применяемой в расчетах транспорта ПД.

**Пятая глава** посвящена разработке программы расчета кинетики выхода ПД из МТ FP-Kinetics. В главе приведены физико-математическая модель программы, начальные и граничные условия, условия устойчивости, а также требуемые начальные данные для работы.

Уравнение диффузии для расчета поля концентраций внутри МТ для сферически-симметричной задачи имеет вид:

$$\frac{\partial c^{(i)}}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 D^{(i)} \frac{\partial c^{(i)}}{\partial r} \right) + \dot{s}, \quad (1)$$

$$\dot{s} = \frac{d}{dt} [c^*(t) \cdot (1 - F(t))],$$

где  $c^{(i)}$  – концентрация нуклида;  $D^{(i)}$  – коэффициент диффузии в слое  $i$ ;  $\dot{s}$  – функция источника радионуклида в ядре,  $c^*$  – концентрация, рассчитываемая из

выгорания, а  $F(t)$  – задерживаемая доля, рассчитываемая из химической термодинамики. Функция источника радионуклида представляет собой изменение концентрации какого-либо радионуклида в единице объема керна в единицу времени за счет процессов генерации и химических реакций. Эти процессы идут существенно быстрее, по сравнению с диффузионным переносом через оболочки МТ. При этом во внутренней области частицы успевают установиться состояние близкое к термодинамически равновесному.

Начальные и граничные условия:

В центре керна, условие сферической симметрии требует, чтобы

$$\left. \frac{\partial c}{\partial r} \right|_{r=0} = 0. \quad (2)$$

Граничное условие на поверхности частицы радиуса  $R$ :

$$c^{(i)}(R, t) = 0, \quad (3)$$

тем самым мы предполагаем, что атомы, попавшие на внешнюю поверхность МТ, не задерживаются на ней и практически сразу попадают в матричный графит и далее в теплоноситель. При этом реализуется консервативная оценка выхода ПД, соответствующая максимальному диффузионному потоку.

Начальное условие:

$$c^{(i)}(r, 0) = c_0^{(i)}(r). \quad (4)$$

где  $c_0^{(i)}(r)$  – начальная концентрация нуклида внутри МТ.

Кроме поля концентраций данная программа также рассчитывает поток  $J$  на выходе из МТ и интегральный выход  $W$  ПД из МТ.

$$J = 4\pi R^2 D^{(5)} \left( \frac{dc}{dr} \right)_{r=R}, \quad (5)$$

где  $D^{(5)}$  – коэффициент диффузии во внешнем слое плотного пироуглерода;

$$W = \int_0^{\tau} J(t) dt, \quad (6)$$



где  $\tau$  – время работы топлива.

В программе FP-Kinetics каждый слой МТ разбивается на отрезки  $\Delta r^{(i)}$ , при этом должно соблюдаться условие устойчивости Куранта  $K < 1$ , где

$$K^{(i)} = D^{(i)} \cdot \frac{\Delta t}{(\Delta r^{(i)})^2}, \quad (7)$$

где  $D^{(i)}$  – коэффициент диффузии в слое  $i$ ,  $\Delta t$  – шаг по времени. Физический смысл условия устойчивости – скорость распространения возмущений в разностной задаче не должна быть меньше, чем в дифференциальной. Если это условие не выполнено, то результат разностной схемы может не стремиться к решению дифференциального уравнения.

Условия на каждом шаге  $\Delta r^{(i)}$  определяются уравнениями:

$$D^{(i)} \frac{\partial c^{(i)}}{\partial r} = D^{(i+1)} \frac{\partial c^{(i+1)}}{\partial r}. \quad (8)$$

Пока концентрация диффундирующего элемента не достигает предельного для слоя значения, диффузионная задача совпадает со стандартной. Если концентрация в каком-либо слое  $i$  достигает предельного значения для этого слоя, то решение задачи разбивается на две части. Сначала рассчитывается профиль концентраций в слоях, начиная от слоя с пределом растворимости и до границы МТ. Вычисленный поток на границе предельного слоя становится граничным условием для оставшихся слоёв МТ.

Для корректного учёта влияния возможных термодинамических скачков на границах слоёв в программу добавлены граничные коэффициенты  $p^{(i)}$  и условия непрерывности потоков, то есть

$$p^{(i)} c^{(i)} = c^{(i+1)}, \quad D^{(i)} \frac{\partial c^{(i)}}{\partial r} = D^{(i+1)} \frac{\partial c^{(i+1)}}{\partial r}, \quad \text{при } r = R_i, \text{ для } i = 1, 2, 3, 4. \quad (9)$$

Граничные коэффициенты представлены для того, чтобы объяснить возможные разрывы, вызванные различными химическими свойствами смежных материалов на поверхности раздела. Непрерывность концентрационного профиля реализуется тогда, когда граничные коэффициенты приняты равными единице.

Таким образом, в коде FP Kinetics существует возможность учета влияния разрывов поля концентраций на кинетику выхода ПД.

Программа FP-Kinetics, как и программа Trafic-FD разработана на языке Fortran. Выход ПД из МТ в программе FP-Kinetics вычисляется, также как и в Trafic-FD, путём решения дифференциального уравнения в частных производных методом конечных разностей и суммированием выходов из всех целых частиц по времени. Уравнение (1) было преобразовано в конечно-разностное уравнение по неявной схеме в уравнение (10).

$$c_n^{t+1} = c_n^t + dt \cdot (k_{2n} \cdot c_{n-1}^{t+1} + k_{3n} \cdot c_{n+1}^{t+1} + \dot{s}) / (1 - dt \cdot k_{1n}), \quad (10)$$

где  $t$  – шаг сетки по времени,  $n$  – шаг сетки по координате,  $\dot{s}$  – функция источника (только для зерна). Коэффициенты  $k_1, k_2, k_3$  вычисляются следующим образом:

$$\begin{aligned} k_1 &= -(3r_{n-1}^2 \cdot A + 3r_n^2 \cdot B) / (r_n^3 - r_{n-1}^3), \\ k_2 &= (3r_{n-1}^2 \cdot A) / (3r_n^3 - r_{n-1}^3), \\ k_3 &= (3r_n^2 \cdot B) / (r_n^3 - r_{n-1}^3), \end{aligned} \quad (11)$$

где  $A = (2D_n \cdot D_{n-1}) / (D_{n-1} \cdot dx_n + D_n \cdot dx_{n-1}),$

$$B = (2D_{n+1} \cdot D_n) / (D_n \cdot dx_{n+1} + D_{n+1} \cdot dx_n).$$

Начальные данные для программы:

- максимальное время работы реактора;
- общее количество слоёв покрытий;
- радиус зерна и толщины слоев;
- количество точек вывода по времени;
- шаг по времени  $\Delta t$  уравнения (7);
- шаг по координате для каждого слоя  $\Delta r^{(i)}$  уравнения (7);
- коэффициенты диффузии исследуемого ПД в каждом материале слоев;
- номер слоя с ограниченной растворимостью;
- предельное значение концентрации в слое с ограниченной растворимостью;

- начальная концентрация  $c_0$  в керне и слоях;

- функция источника  $\dot{s}(t)$  уравнения (1) и (10) задаётся как  $dc_0^*/dt$ .  
 $c_0^* = c^*(t) \cdot (1 - F)$ , где  $c^*(t)$  – концентрация элемента, полученная из нейтронно-физического расчёта,  $F$  – задерживаемая доля из термодинамического расчёта. То есть функция источника это изменение концентрации исследуемого несвязанного ПД в единице объема в единицу времени за счёт генерации, распадов и химических реакций.

После проведения вычислений, программа в каждой точке вывода по времени выдаёт рассчитанные значения профиля концентраций, потоков на границе МТ и интегральных выходов ПД из МТ, время достижения предельной концентрации в слое с ограниченной растворимостью, а также время падения концентрации в слое с ограниченной растворимостью ниже предельной.

В отличие от программы Trafic-FD, программа FP-Kinetics позволяет задать предельную растворимость ПД в любом слое покрытия МТ, а также учесть влияние эффекта задерживаемой доли.

**В шестой главе** проведено исследование влияния эффектов задерживаемой доли и ограниченной растворимости на транспорт ПД в МТ с TRISO покрытием. Показано, что в связи со значительными различиями между данными, взятыми из разных источников, экспериментальные коэффициенты диффузии ПД в материалах МТ нуждаются в уточнении.

В параграфе 6.3.1 исследовалась кинетика транспорта серебра в МТ и влияние ограниченной растворимости на выход серебра из МТ. На основе нейтронно-физического расчёта и геометрических параметров для серебра была рассчитана функция источника.

На рисунке 6 приведён расчётный профиль концентрации серебра для 3 вариантов температур при  $t = 920$  суток при условии, что ограниченная растворимость не учтена. На рисунке 7 приведён профиль концентрации серебра при тех же условиях, но с учетом ограниченной растворимости в слое  $SiC$ . Из данных графиков видно, что учёт ограниченной растворимости ведёт к

существенному изменению профилей концентраций, к накоплению серебра внутри МТ, особенно при низких температурах. При температуре в 1673K концентрация  $Ag$  в слое  $SiC$  не достигает предела растворимости, поэтому профиль концентрации при данной температуре от этого эффекта не зависит.

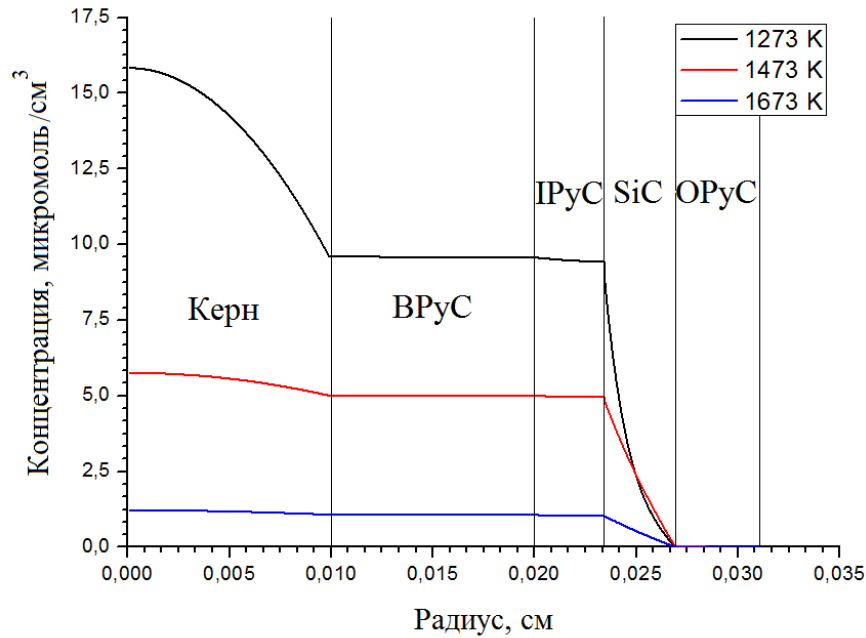


Рисунок 6 – расчётный профиль концентрации серебра для 3 вариантов температур при  $t = 920$  суток без учёта ограниченной растворимости

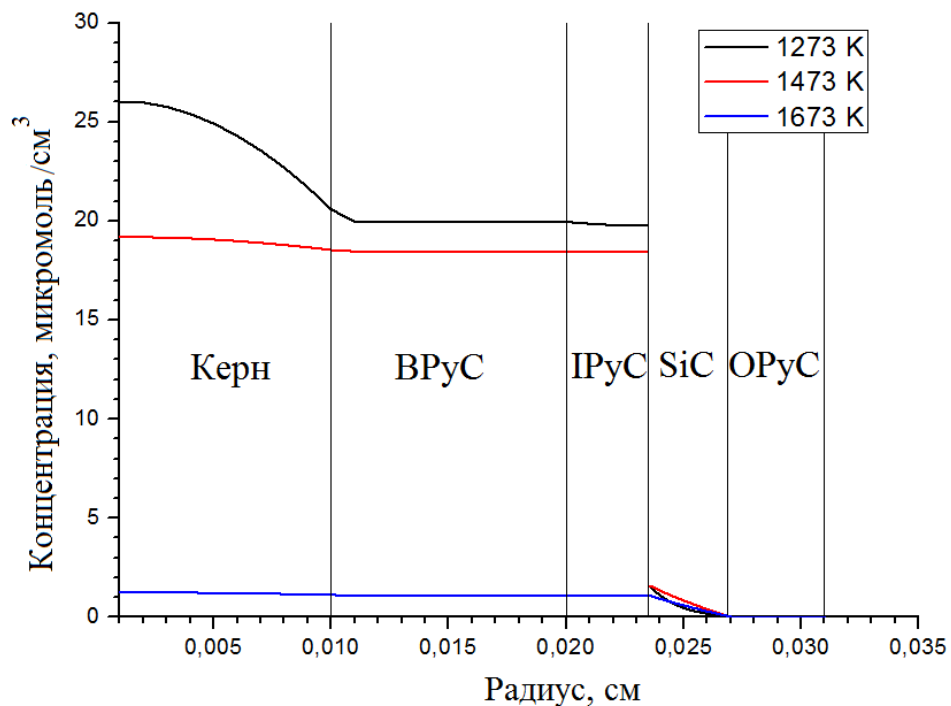


Рисунок 7 – расчётный профиль концентрации серебра для 3 вариантов температур при  $t = 920$  суток с учётом ограниченной растворимости слоя SiC

Учёт ограниченной растворимости приводит к корректировке профилей концентрации, потоков и интегральных выходов ПД из МТ, в особенности при более низких температурах. Данные о выходе Ag-110 из МТ без учёта эффекта ограниченной растворимости на момент времени 920 суток собраны в таблицу 2, а с учётом влияния ограниченной растворимости – в таблицу 3.

Таблица 2 Поток и интегральный выход Ag из 1 МТ на 920 сутки работы реактора без учёта ограниченной растворимости.

Температура, K	Поток $J$ , микромоль/с	Интегральный выход $W$ , микромоль
1273	5,75E-13	1,93E-05
1473	1,19E-11	7,86E-04
1673	1,71E-11	1,52E-03

Таблица 3 Поток и интегральный выход Ag из 1 МТ на 920 сутки работы реактора с учётом ограниченной растворимости.

Температура, K	Поток $J$ , микромоль/с	Интегральный выход $W$ , микромоль
1273	7,11E-14	3,58E-06
1473	2,89E-12	2,17E-04
1673	1,71E-11	1,52E-03

Проведённые исследования показали, что в рассматриваемой задаче наибольшее влияние эффект ограниченной растворимости оказывает при температуре 1373K. В случае аварийного увеличения температуры до 1673K накопленное в слоях покрытий серебро может выходить из МТ существенно быстрее, даже учитывая ограниченную растворимость и низкий коэффициент диффузии Ag в SiC. Также видно, что в случае аварийного увеличения температуры до 1673K накопленное в слоях покрытий серебро может выходить из

МТ существенно быстрее, несмотря на ограниченную растворимость и низкий коэффициент диффузии  $Ag$  в  $SiC$ .

В параграфе 6.3.2 исследовалась кинетика транспорта цезия в МТ и влияние задерживаемой доли и ограниченной растворимости на выход цезия из МТ. Были выполнены расчеты концентрационных профилей, потоков и интегральных выходов  $Cs$ . На рисунке 8 показаны концентрационные профили  $Cs$  в зависимости от координаты для различных времён работы реактора при температуре 1473К. До выгорания 30% *FIMA* концентрация цезия в керне растёт, и цезий диффундирует в слои покрытий. Максимальная концентрация в керне достигается в районе 7064 часов – синяя линия на рисунке 8. В слое  $SiC$  цезий имеет низкий коэффициент диффузии и низкую предельную растворимость, поэтому в некоторый момент времени возникает разрыв в концентрационном профиле. После выгорания 30% *FIMA* концентрация чистого цезия в керне уменьшается до 0 и происходит обратная диффузия накопившегося  $Cs$  из слоёв покрытий. На рисунке 8 это видно по линиям с временами более 9713 часов. Казалось бы, после этого выход  $Cs$  из МТ должен существенно снизиться. Однако к этому времени в слое  $SiC$  произошло заметное накопление цезия. В результате этот слой становится “источником” цезия. При этом диффузия накопившегося цезия проходит как во внешнюю, так и во внутреннюю область МТ. При больших временах работы реактора несвязанный цезий в МТ присутствует практически только в слое  $SiC$ . В керне и буферном слое цезий связан в устойчивые соединения, а внешний пироуглеродный слой с относительно высоким коэффициентом диффузии не способен удержать ту часть цезия, которая проникла за барьер из  $SiC$ .

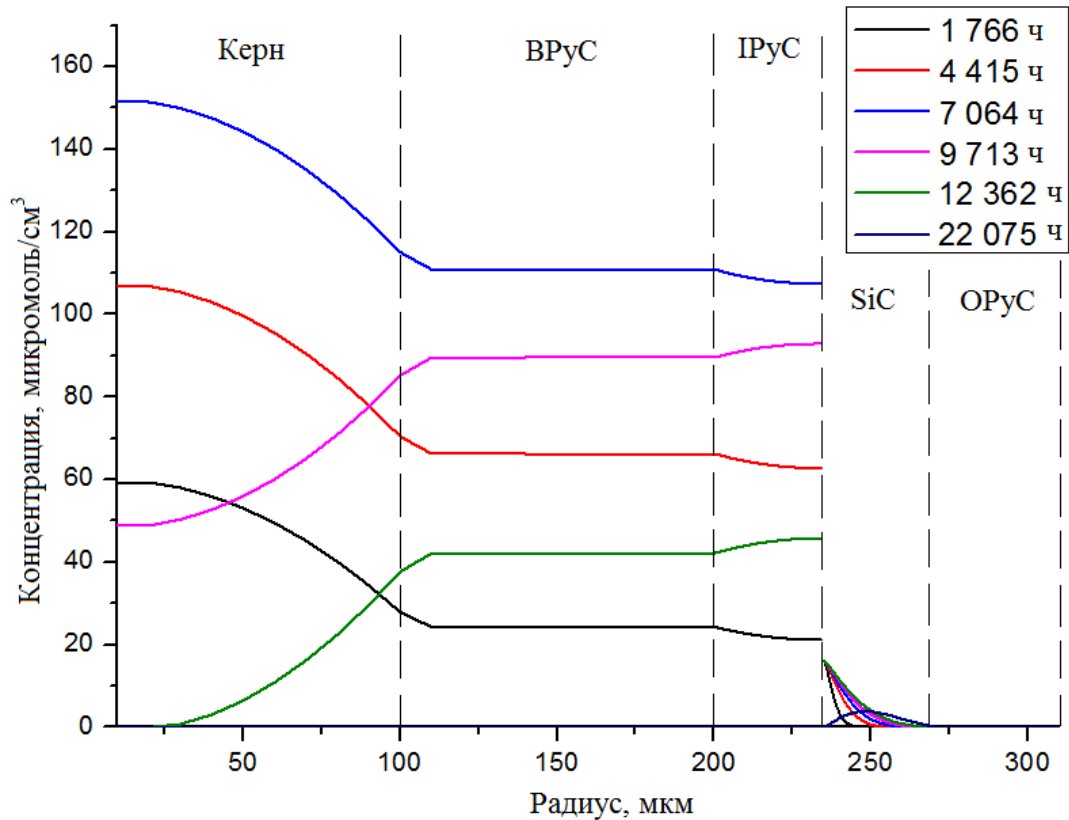


Рисунок 8 – концентрационные профили Cs в зависимости от координаты для различных времён работы реактора при температуре 1473К для микротвэлов без геттера кислорода

На рисунке 9 показаны графики потоков на границе МТ для трех температур, а на рисунке 10 интегральный выход Cs из МТ. Согласно рисунку 9 при больших временах работы реактора и высоких температурах (1673К) поток цезия на границе МТ резко замедляется. Однако при более низких температурах связывание цезия в керне не успевает повлиять на поток на рассматриваемом расчетном промежутке времени.

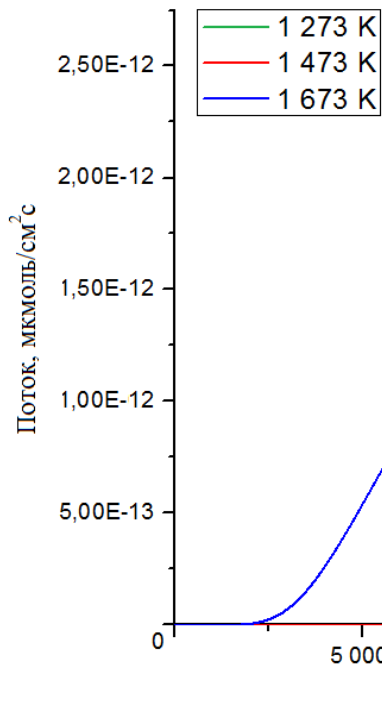


Рисунок 9 – поток цезия на границе МТ для температур 1273, 1473 и 1673К

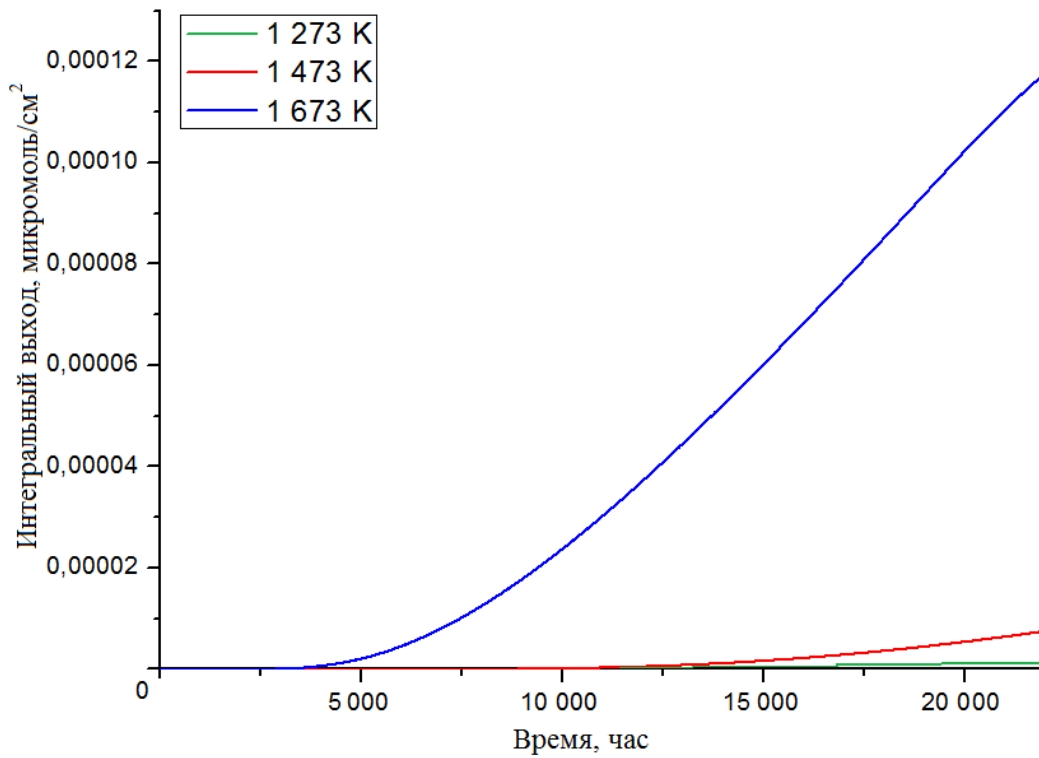


Рисунок 10 – интегральный выход цезия из МТ без геттера кислорода для температур 1273, 1473 и 1673К



В параграфе 6.4 был проведён анализ влияния термодинамических скачков концентраций на границах слоёв покрытий в МТ на перенос ПД. Показано, что термодинамические скачки могут оказывать существенное влияние на выход ПД из МТ.

**В заключении** диссертационной работы сформулированы ее основные результаты и выводы:

1 Проведено исследование влияния эффекта задерживаемой доли на измеряемые в опыте эффективные коэффициенты диффузии. Показано, что связывание части диффундирующего компонента не сказывается на его коэффициентах диффузии, но приводит к существенно другому результату по выходу ПД. Поэтому в исследованиях переноса ПД необходимо использовать известные эффективные коэффициенты диффузии и вместе с тем определять задерживаемую долю химически связанного компонента из термодинамических расчетов. Таким образом, коэффициенты диффузии, измеряемые в эксперименте по тангенсу угла наклона временной зависимости потока, в рассматриваемом приближении не зависят от задерживаемой доли диффундирующего компонента, и отпадает необходимость модификации базы данных, применяемой в расчетах транспорта ПД.

2 Проведено исследование термодинамики микротрещин с плутониевым топливом при глубоком выгорании. Обнаружено anomalous поведение задерживаемой доли цезия в МТ без геттера кислорода. До выгорания ~ 25% *FIMA* задерживаемая доля практически не изменяется. С ~25% до ~50% *FIMA* наблюдается рост задерживаемой доли за счёт образования устойчивых соединений ( $Cs_2CO_3$ ,  $CsI$ ,  $CsBr$ ,  $Cs_2O$  и др.). При больших выгораниях несвязанного Cs в керне практически не остается, и задерживаемая доля оказывается близка к 1.

3 Разработана физ.-мат. модель и программа FP-Kinetics для расчета транспорта ПД в МТ. Этот код позволяет учесть влияние эффектов химического связывания и ограниченной растворимости, что особенно важно при анализе задач с глубоким выгоранием ядерного топлива.

4 Разработана методика исследования профилей концентрации ПД в МТ и зависимостей потока и интегрального выхода ПД от глубины выгорания ядерного топлива на основе данных нейтронно-физического расчета, программы расчета термодинамики ИВТАНТЕРМО и программы расчета кинетики FP-Kinetics, учитывающей ограниченную растворимость.

5 На базе кода FP-Kinetics исследовано влияние геттера кислорода на выход Cs из МТ. Обнаружено, что, несмотря на аномальное поведение задерживаемой доли Cs в микротопливе без геттера кислорода, отличие в интегральном выходе Cs в МТ с геттером и без геттера кислорода не велико, если время наблюдения не превышает 920 суток. Присутствие геттера кислорода не приводит к какому-либо заметному росту выхода цезия из МТ независимо от температуры.

6 На основе разработанного кода FP-Kinetics проведено исследование влияния ограниченной растворимости на выход ряда ПД из МТ с TRISO покрытием. Показано, что учет эффекта ограниченной растворимости продуктов деления в SiC покрытии приводит к разрыву профиля концентрации соответствующего компонента и существенно влияет на профиль концентрации и выход серебра из МТ практически во всем диапазоне рабочих температур. Рассчитаны потоки на границе МТ и интегральные выходы ПД из МТ за время работы реактора (920 суток). Показано, что поток серебра за счет эффекта ограниченной растворимости в области рабочих температур может быть снижен на порядок величины. Наибольшего влияния эффект ограниченной растворимости в случае серебра достигает при температуре  $\sim 1400\text{K}$ . При данной температуре учёт исследуемого эффекта снижает поток атомов серебра в конечной точке выбранного временного интервала (920 дней) в  $\sim 12$  раз, а интегральный выход в  $\sim 7$  раз.

7 Проведён анализ влияния термодинамических скачков на выход серебра и цезия из МТ. Показано, что термодинамические скачки могут существенно влиять на выход ПД из МТ.

8 Таким образом, эффекты задерживаемой доли и ограниченной растворимости играют существенную роль в процессах переноса продуктов деления микротоплива при глубоких выгораниях и их необходимо принимать во внимание при разработке и проектировании микротоплива.

**Основные положения диссертационной работы изложены в следующих публикациях:**

1. Ponomarev-Stepnoy, N.N. Evaluation of the Thermodynamics of Deep Burnup HTGR Fuel with Plutonium Kernels / N.N. Ponomarev-Stepnoy, V.M. Makarov, A.S. Ivanov, I.A. Belov, **A.A. Rusinkevich**, T. Lindemer, D. McEachern, J. Razvi // 4th International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology HTR 2008. – 2008. – Washington DC, USA.

2. Ponomarev-Stepnoy, N.N. Peculiarities of Fission Products Transport in HTGR Coated Fuel Particles at High Burnup Levels / A.S. Ivanov, **A.A. Rusinkevich**, G.V. Belov // 5th International Conference on High Temperature Reactor Technology HTR 2010. – 2010. – Прага, Чехия.

3. Иванов, А.С. Эффективные коэффициенты диффузии металлических продуктов деления в кернах микротоплива ВТГР с учетом влияния задерживаемой доли / А.С. Иванов, **А.А. Русинкевич** // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. – 2010. Вып. 4, с. 65-69.

4. **Русинкевич, А.А.** Эффект задерживаемой доли в микротвэлах с плутониевым топливом / **А.А. Русинкевич**, А.С. Иванов // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. – 2012. Вып. 2. С. 83-92.

5. **Rusinkevich, A.A.** The Anomalous Behavior of Cesium in Plutonium Microfuel / A.A. Rusinkevich, A.S. Ivanov // XIX International Conference on Chemical Thermodynamics in Russia RRCT-2013. – 2013. Москва, МИТХТ. Abstracts of the XIX International Conference on Chemical Thermodynamics in Russia RRCT-2013 (June 24-28, 2013, Moscow). MITHT Publisher. – 2013. P. 436.

6. Иванов, А.С. Кинетика выхода серебра из микротоплива с учетом эффекта ограниченной растворимости / А.С. Иванов, **А.А. Русинкевич** //

Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. – 2013. Вып. 4. С. 76-84.

7. Иванов, А.С. Коэффициенты диффузии металлических продуктов деления в топливном керне при учете эффекта задерживаемой доли / А.С. Иванов, **А.А. Русинкевич** // В сборнике аннотаций: 7-ая Курчатовская молодежная научная школа. 10-12 ноября 2009. НИЦ “Курчатовский институт”, Москва.

8. **Русинкевич, А.А.** Аномальное поведение Cs в микротвэлах с плутониевым топливом / **А.А. Русинкевич**, А.С. Иванов // В сборнике аннотаций: 9-ая Курчатовская молодежная научная школа. 22-25 ноября 2011. НИЦ “Курчатовский институт”, Москва.

9. Ivanov, A.S. Kinetics of Silver Release from Microfuel with Taking into Account the Limited-Solubility Effect / A. S. Ivanov, **A. A. Rusinkevich** // Physics of Atomic Nuclei. – 2014. Vol. 77. No. 14. P. 1677–1684.

10. Ivanov, A.S. The Kinetics of Fission Products Release from Microfuel Taking into Account the Trapped Fraction and Limited Solubility Effects. HTR2014-31109 / A.S. Ivanov, **A.A. Rusinkevich** // 7th International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology HTR 2010. October 27-31. 2014. Weihai, China.

11. **Русинкевич, А.А.** Кинетика выхода продуктов деления из микротоплива с учетом задерживаемой доли и ограниченной растворимости / **А.А. Русинкевич**, А.С. Иванов, И.Е. Голубев // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. – 2015. Вып. 1. С. 50-58.