RS06RA016

OSLOBADJANJE FISIONIH GASOVA IZ GORIVA OD SINTEROVANOG UO_2

F. Sigulinski i M. Stevanović

Prikazani su mehanizmi koji kontrolišu izdvajanje fisionih gasova iz sinterovanog UO_2 pri različitim brzinama izgaranja: izletanje, izbijanje, difuzija, povećano izdvajanje fisionih gasova koje prati strukturne promene u gorivu. Razmatrano je proučavanje izdvajanja fisionih gasova iz goriva za reaktore snage. Analiziran je uticaj faktora kao što su temperatura, karakteristike goriva, brzina i stepen izgaranja.

U V O D

Mada prisutni u najvećoj koncentraciji, metalni fisioni produkti koji uglavnom grade stabilne okside, nisu najvažniji u tehnološkom pogledu. Ovaj značaj pridaje se plemenitim gasovima (Xe i Kr) zbog njihove zanemarljive rastvorljivosti u UO_2, znatnog fisionog polja i relativno niske toplotne provodljivosti.

Zbog ovih osobina Xe i Kr oslobodjeni za vreme ozračivanja mogu proizvesti pritisak dovoljan da dodje do raspraskavanja košuljice gorivnog elementa. Tako napr., u uobičajenim uslovima gorivnih elemenata za vodom hladjene reaktore (prečnik pilule od 1 cm, dijametralni zazor od 0,005 cm, pri temperaturi površine goriva od 600°C) pritisak u košuljici koji nastaje pri stepenu izgaranja od 1% može da prevazidje 400 atm. ako se pretpostavi da je došlo do potpunog oslobadjanja gasova nastalih fisijom. Zbog gubitka u reaktivnosti koji su povezani sa većom debljinom zida košuljice, konstrukcija gorivnog elementa koja bazira na pretpostavci totalnog oslobadjanja fisionih gasova dovodi do ozbiljnih ekonomskih mana u poredjenju sa konstrukcijom (debljina košuljice, veličina zazora) gorivnog elementa koja bazira na tačno predvidjenom oslobadjanju gasa.

Interes za oslobadjanje fisionih gasova, medjutim, nije ograničen samo na eksperimente u kojima se frakciono oslobadjanje meri u radnim uslovima reaktora. On se raširio

na kompletno razumevanje mnogih procesa pomoću kojih fisioni produkti migriraju u gorivu i izlaze iz goriva. Krajnji cilj je kontrola brzine oslobadjanja fisionih gasova i pronalaženje uslova za rad goriva sa najvećom efikasnošću.

Pošto u posebnom radu razmatramo metode odredjivanja količine i pritiska oslobodjenih fisionih gasova iz goriva u ovom radu vršimo analizu mehanizama koji kontrolišu izdvajanje u različitim uslovima kao i analizu uticaja različitih faktora na oslobadjanje fisionih gasova iz UO_2 goriva.

1. MEHANIZMI IZDVAJANJA

Prednost UO_2 goriva u odnosu na metalna goriva je način zadržavanja i izdvajanja fisionih gasova. Nastali gasovi se smeštaju u rešetku, a zadržavaju u njoj do odredjene koncentracije i oslobadjaju sa površine goriva brzinama koje su u zavisnosti od temperature goriva, strukture i veličine slobodne površine, kontrolisane različitim mehanizmima: izletanjem i izbijanjem, difuzijom i procesima koji dovode do strukturnih promena u gorivu.

1.1. Mehanizam izletanja

Deo fisionih fragmenata, koji izlazi iz uzorka direktnim izletanjem zavisi od opsega izletanja - dometa fisionog fragmenta i geometrijske veličine i oblika uzoraka. Domet fisionog fragmenta je zavisan od njegove atomske mase (sl. 1), odnosno energije. Energija fisionih fragmenata može da bude dovoljna da izleti fragment udje u rešetku površine na njegovom putu (čestica goriva, košuljica).

Količina fisionih gasova izdvojena izletanjem, nezavisna je od temperature i brzine fisije.

Za cilindričnu tabletu, prečnika d, frakcioni gubitak izletanjem f, fisionog produkta sa dometom r, je

$$f = \frac{r}{d} \qquad (1)$$

S obzirom na vrlo male vrednosti r za fisione fragmente u odnosu na prečnik goriva (za d = 1 cm i r = 8 μ f = 0,08%) količina oslobodjenih fisionih gasova izletanjem iz cilindričnih tableta goriva je zanemarljivo mala. Mnogo je veći gubitak u slučaju sfere dispergovanog goriva malog prečnika. U tom slučaju je

$$f = \frac{3}{2}\left(\frac{r}{D}\right) - 3\left(\frac{r}{D}\right)^2 + \frac{1}{2} - \left(\frac{r}{D}\right)^3 \qquad (2)$$

gde je D prečnik čestice. Tako naprimer, za D = 100 μ i r = 8 μ gubitak izletanjem može da dostigne i 10% /1, 3/.

1.2. Mehanizam izbijanja

Po shvatanju Lewisa/2/ i Childsa/3/ pri velikoj koncentraciji fisionih fragmenata (veliki stepen izgaranja, velika brzina fisije) do oslobadjanja fisionih gasova prisutnih blizu površine goriva može da dodje mehanizmom izbijanja (knock-out) od strane fragmenata fisije velike energije. Na ovaj način oslobodjeni fisioni fragmenti nemaju dovoljnu energiju da ponovo udju u rešetku UO_2 ili u materijal košuljice. Količina ovako oslobodjenih gasova je proporcionalna koncentraciji gasova u rešetki i stvarnoj površini goriva.

1.3. Mehanizam difuzije

Na osnovu proučavanja količine oslobodjenih fisionih gasova iz sinterovanog goriva konstatovano je da ona osetno raste sa podizanjem temperature /4, 5/, opada sa povećanjem gustine goriva, odnosno da je kontrolni mehanizam oslobadjanja gasova njihova difuzija kroz rešetku UO_2.

Količina oslobodjenih gasova posredstvom difuzije fisionih fragmenata usled složenosti polikristalne strukture sinterovanog goriva ne zavisi samo od koeficijenta difuzije i ne može se razmatrati kao difuzija gasa kroz čvrsto telo odredjene geometrije.

Razmatranje oslobadjanja fisionih gasova iz goriva difuzijom proučava se preko modela. Najadekvatniji model dali su Booth /6/ i Lustman /7/. Oni predpostavljaju aktiviranu difuziju kao mehanizam oslobadjanja gasa kroz pore - kontrolni mehanizam oslobadjanja. Prolaz gasa putem otvorene poroznosti van goriva je znatno brži.

Model je razvijen matematički /6, 7/, uz predpostavku da se UO_2 tableta ili prah mogu predstaviti uniformnim sferama teorijske gustine sa istim odnosom ukupne specifične površine prema zapremini. Ekvivalentna sfera poluprečnika a /cm/ za tabletu ukupne površine S (cm^2/cm^3), čija je gustina ρ izražena kao deo od teorijske gustine, data je izrazom

$$a = \frac{3\rho}{S} \qquad (3)$$

Na taj način matematičko rešenje Fickovog drugog zakona za sferu poluprečnika a, sa usvojenim graničnim uslovima, treba da predstavlja brzinu oslobadjanja fisionih produkata iz UO_2

sa ekvivalentnim fizičkim osobinama /18/. Pritom se predpostavlja da ne postoje zatvorene pore u uzorku, i da je koncentracija fisionih produkata jednaka nuli na površini sfere. Od važnosti su matematička rešenja za par slučajeva.

1.3.1. Izotermalni uslovi

Eksperimenti za ispitivanje oslobadjanja fisionih produkata pri izotermalnim uslovima ili približno izotermalnim uslovima mogu da se izvedu na dva načina /9/. Jedna od metoda je da se gorivni materijal ozrači pri niskim temperaturama (manjim od 800°C) tj. na temperaturi gde je gubitak usled difuzije zanemarljiv, i tada da se odgreva na povišenoj temperaturi izvan reaktora. Fisioni produkti koji se oslobadjaju sakupljaju se i odredjuje se brzina oslobadjanja fisionih produkata na različitim temperaturama. Drugi metod se odnosi na eksperimente u kojima se odredjuju brzine oslobadjanja fisionih produkata pri ozračivanju uzorka na povišenoj temperaturi. Približno izotermalni uslovi za vreme ozračivanja se ostvaruju upotrebom pomoćnih grejača i odgovarajuće gustine neutronskog fluksa ili pak upotrebom vrlo tankih uzoraka UO_2. Mada je druga metoda mnogo tačnija, ona je teško izvodljiva zbog teškoća merenja i kontrolisanja temperature u gorivu pri ozračivanju.

Jednačina koja opisuje brzinu oslobadjanja datog fisionog produkta iz UO_2 na odredjenoj temperaturi u toku odgrevanja uzorka koji je ozračen na niskoj temperaturi, zasnovana je na predpostavci da je početna koncentracija fisionog produkta u celom uzorku ista. U ovom slučaju opšta jednačina za difuziju je

$$\frac{\delta C}{\delta t} = D \left(\frac{\delta^2 C}{\delta r^2} + \frac{2}{r} \cdot \frac{\delta C}{\delta r} \right) \qquad (4)$$

gde je D difuziona konstanta, C koncentracija fisionog produkta na rastojanju r, u vremenu t. Frakcija f datog fisionog produkta koja se oslobodi u vremenu t odredjuje se integriranjem količine koja prolazi kroz površinu i deljenjem sa prvobitno prisutnom količinom. Rezultat je dat izrazom

$$f = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left(-n^2 \pi^2 Dt/a^2\right) \qquad (5)$$

U jednačini (5) a je poluprečnik ekvivalentne sfere.

Za vrednosti frakcionog oslobadjanja manje od 0,7 , što odgovara vrednosti

$$\frac{\pi^2 Dt}{a^2} \leqslant 1$$

vrednost f može se prikazati izrazom

$$f = 6 \left(\frac{Dt}{\pi a^2}\right)^{1/2} - \frac{3Dt}{a^2} \qquad (6)$$

Drugi izraz na desnoj strani jednačine je zanemarljiv za vrednosti

$$\frac{\pi^2 Dt}{a^2} < 0{,}01$$

što odgovara vrednosti $f \sim 0{,}10$. Tako je brzina oslobadjanja fisionih gasova iz UO_2 pod izotermalnim uslovima proporcionalna kvadratnom korenu iz vremena.

Iz jednačine (6) merenjem količine oslobodjenih fisionih gasova može se odrediti konstanta difuzije D odredjenog fisionog produkta. Medjutim, usled toga što se vrednost

specifične površine goriva teško odredjuje, a radi normalizovanja dobijenih vrednosti, koeficijent difuzije izražava se preko vrednosti prividnog koeficijenta difuzije

$$D' = \frac{D}{a^2} \tag{7}$$

Vrednost D' predstavlja karakteristiku sinterovanog UO_2. Koeficijent D' može se izraziti u funkciji temperature preko Arhenijusovog izraza

$$D'_t = D'_o \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \tag{8}$$

Drugo matematičko rešenje koje je od interesa bazira na predpostavki da fisioni produkt biva generisan konstantnom brzinom B za vreme dok se odvija oslobadjanje. U ovom slučaju opšta diferencijalna jednačina za difuziju je

$$\frac{\delta c}{\delta t} = D\left(\frac{\delta^2 c}{\delta r^2} + \frac{2}{r}\frac{\delta c}{\delta r}\right) + B \tag{9}$$

Iz jednačine (9) količina fisionih produkata koja prolazi kroz površinu u vremenu t dobija se integriranjem. Kada se ovaj rezultat podeli sa ukupnom količinom fisionih gasova nastalih u vremenu t, frakciono oslobadanje f je dato izrazom /6/

$$f = 1 - \frac{6a^2}{90Dt} + \frac{6a^2}{\pi^4 Dt}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n^4}\exp\left(-n^2\pi^2 Dt/a^2\right) \tag{10}$$

Za vrednosti frakcionog oslobadjanja f manje od 0,57, što odgovara

$$\frac{\pi^2 Dt}{a^2} \leqslant 1$$

vrednost f data je aproksimativnim izrazom

$$f = 4\left(\frac{Dt}{\pi a^2}\right)^{1/2} - \frac{3Dt}{2a^2} \tag{11}$$

Drugi član izraza (11) je takodje zanemarljiv za vrednosti

$$\frac{\pi^2 Dt}{a^2} < 0{,}01$$

tako da je frakciono oslobađanje proporcionalno kvadratnom korenu iz vremena.

1.3.2. Izotermalni uslovi sa raspadanjem

Model za oslobadjanje radioaktivnih fisionih produkata iz gorivnog materijala bazira na difuzionom modelu, diskutovanom u prethodnoj tački za stabilne fi ione produkte, sa izrazom C koji se dodaje za raspad radioaktivne vrste, konstante raspada . Opšta difuziona jednačina, ne uzimajući u obzir stepen sagorevanja je

$$\frac{\delta C}{\delta t} = D\left(\frac{\delta^2 C}{\delta r^2} + \frac{2}{r}\frac{\delta C}{\delta r}\right) + B - \lambda C \qquad (12)$$

Rešenje jednačine (12) dato je od Eichenberga /5/ i Booth /10/ sledećim izrazom

$$N_i = 4\pi a^3 B \left\{\left[\frac{D'}{\lambda}\coth\left(\frac{\lambda}{D'}\right)^{1/2} - \frac{D'}{\lambda}\right] e^{\frac{2}{\pi^2}e^{-\lambda t}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1-e^{-n^2\pi^2 D' t}}{n^2(n^2\pi^2 D' t\lambda)}\right. \qquad (13)$$

gde je $D' = D/a^2$

a = poluprečnik ekvivalentne sfere

N_i = ukupni broj atoma izvan ekvivalentne sfere

Broj sfera poluprečnika a po cm^3 goriva je

$$n = \frac{1}{\frac{4}{3}\pi a^3}$$

Prema tome, broj oslobodjenih atoma 1 cm^3 goriva je

$$N(t) = nN_i = 3B \left\{ \left[\frac{D'}{\lambda} \coth \left(\frac{\lambda}{D'}\right)^{1/2} - \frac{D'}{\lambda} \right] \frac{1-e^{-\lambda t}}{\lambda} - \frac{2}{\pi^2} e^{-\lambda t} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1 - e^{-n^2 \pi^2 D' t}}{n^2 (n^2 \pi^2 D' + \lambda)} \right\} \quad (14)$$

Kako je frakciono oslobadjanje radioaktivne vrste definisano kao odnos broja atoma izvan goriva u vremenu i broja koji postoji u gorivu, u slučaju kad nema difuzije važi sledeći izraz

$$f(t) = \frac{N(t)}{\frac{B}{\lambda}(1-e^{-\lambda t})} = \frac{N(t)\lambda}{B(1-e^{-\lambda t})} \quad (15)$$

Kombinacijom jednačine (14) i (15) dobija se izraz

$$f(t) = 3 \left\{ \left[\left(\frac{D'}{\lambda}\right)^{1/2} \coth \left(\frac{\lambda}{D'}\right)^{1/2} - \frac{D'}{\lambda} \right] - \frac{2\lambda e^{-\lambda t}}{\pi^2 (1-e^{-\lambda t})} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1-e^{-n^2 \pi^2 D' t}}{n^2 (n^2 \pi^2 D' t + \lambda)} \right\} \quad (16)$$

odnosno u ravnotežnim uslovima

$$f = 3\left(\frac{D'}{\lambda}\right)^{1/2} \left[\coth \left(\frac{\lambda}{D'}\right)^{1/2} - \left(\frac{D'}{\lambda}\right)^{1/2} \right. \quad \text{za } \left(\frac{\lambda}{D'}\right)^{1/2} > 10. \quad (17)$$

Jednačina (17) može se aproksimirati izrazom

$$f \approx 3\left(\frac{D'}{\lambda}\right)^{1/2} \quad (18)$$

1.3.3. Neizotermalni uslovi

Proučavanje oslobadjanja fisionih gasova preko gore opisanog modela iz goriva pri ozračivanju je vrlo složeno usled neizotermalnih uslova u gorivu, postojanja radijalnog i aksijalnog temperaturnog gradijenta. Da bi se gornji model primenio na takav slučaj postupku opisanih matematičkih operacija prethodi deljenje goriva u izotermalne segmente i sabiranju količine izdvojenih fisionih gasova u svakom segmentu pojedinačno.

1.3.4. Ograničenje modela

Opisani model je gotovo u potpunosti adekvatan za praškasti materijal i za tablete sa niskom gustinom, ali je pitanje da li je ovaj model primenjiv za tablete sa gustinom preko 90% od teorijske. Naime, pri višim gustinama stvarna geometrija i zatvorena poroznost mogu da imaju važnu ulogu u mehanizmu oslobadjanja. Za tablete sa gustinom većom od 97% od teorijske, difuzioni model koji bi bio baziran na geometriji tablete verovatno je tačniji nego upotreba ekvivalentne sfere.

Značajni faktor koji je zanemaren u modelu je prisustvo zatvorenih pora. Može se očekivati da će fisioni produkti pri difuziji iz UO_2 ići u zatvorene pore isto tako kao i u otvorene. Pošto zatvorene pore nisu spojene, zarobljeni gas neće doprineti pritisku u košuljici. Medjutim, fisioni gas u zatvorenim porama, može da stvori lokalni pritisak tako da dodje do plastičnih deformacija UO_2, pored bubrenja, ako su temperatura i pritisak dovoljno visoki. Količina gasa unutar zatvorenih pora može da bude ograničena prisustvom prepreka, takvih kao granica zrna ili ponovnim ulaskom fisionih produkata u rešetku UO_2.

Greška koja se uvodi u predvidjanju frakcionog oslobadjanja ne uzimanjem u obzir zatvorenih pora proučavana je od strane Rosenthala /11/. Odredjena je uporedjivanjem frakcionog oslobadjanja izračunatog preko difuzionog modela sa oslobadjanjem koje je uzimalo u obzir zatvorene pore. Rezultati pokazuju da je frakciono oslobadjanje isto za početak ozračivanja, ali da je za duže vreme ozračivanja oslobadjanje proračunato na bazi zanemarivanja zatvorenih pora veće od stvarnog.

Drugi efekat koji nije razmatran u modelu je ponovno ulaženje oslobadjanih gasovitih fisionih produkata u rešetku UO_2. Ovaj mehanizam prvo je dao Lewis /12/. Pošto je mehanizam suprotan od mehanizma oslobadjanja, on može da smanji pritisak u košuljici goriva. Očigledno je da takav mehanizam postoji ali je kvantitativna procena količine gasa koji ulazi u rešetku nesigurna. Pokazano je da ovaj proces /9/ može da smanji pritisak u gorivnom elementu do približno 100 atmosfera.

U difuzionom modelu se i to tako zanemaruje efekat promene sastava UO_2 kao rezultat nagomilavanja čvrstih fisionih produkata. Treba očekivati da ove promene u sastavu prouzrokuju promene u difuzionom koeficijentu gasovitih fisionih produkata.

Pored diskutovanih faktora, postoji nekoliko važnih ograničenja povezanih sa načinom upotrebe modela. Uobičajeno je da se vrši merenje fizičkih osobina u UO_2 pre ozračivanja ili merenjem brzine oslobadjanja pri vrlo niskim stepenima izgaranja sa predpostavkom da fizičke osobine i brzina oslobadjanja ostaju konstantni za vreme ozračivanja. Već je pomenuto da se brzina oslobadjanja menja kao rezultat promena sastava UO_2.

Pored toga, na fizičke osobine i brzinu oslobadjanja fisionih gasova utiču strukturne promene koje se javljaju za vreme ozračivanja. Ozračivanje UO_2 na dovoljno niskim temperaturama pri kojima ne dolazi do strukturnih promena (osim prskanja UO_2), kakva se razmatraju preko modela nisu od interesa za reaktore snage.

O proučavanju mehanizma oslobadjanja fisionih gasova preko navedenog difuzionog modela može biti govora uz odgovarajuća ograničenja primenjivosti usled navedenih faktora, do temperature u gorivu na kojima se dešavaju strukturne promene. Njegova primenjivost u svakom slučaju otpada za temperature u gorivu iznad 1500°C, kada dolazi do procesa migracije mase goriva, daljeg sinterovanja, rasta zrna i topljenja koje prati naglo oslobadjanje fisionih gasova.

1.4. Mehanizam povećanog oslobadjanja za vreme rasta zrna

Na dovoljno visokim temperaturama i u prisustvu velikog gradijenta temperature, oslobadjanje fisionih produkata zapreminskom difuzijom može da bude uvećano zahvaljujući drugim procesima, koji nastaju kao rezultat promena u mikrostrukturi. U toku isparavanja UO_2 u oblasti stubičastog rasta zrna, pri isparavanju i kondenzaciji UO_2 u očivastim porama, dolazi do oslobadjanja svih prisutnih fisionih produkata.

Brzina kojom fisioni produkti iz date zapremine u oblasti stubičastog rasta zrna prodiru do centralne šupljine, za dalju temperaturnu raspodelu opadaće brzo sa vremenom paralelno sa smanjivanjem koncentracije pora kroz koje mehanizmom isparavanja i kondenzacije dolazi do stubičastog rasta zrna.

Ukupno frakciono oslobadjanje iz oblasti stubičastog rasta zrna za vreme dugog ozračivanja je u opsegu 50 - 100% /3/.

Oslobodjena frakcija fisionih gasova iz ove oblasti biće manja ukoliko je srednja brzina izgaranja znatno manja od maksimalne brzine izgaranja. Oslobadjanje fisionih produkata koji nastaju usled kretanja pora odgovaraće tada u najvećoj meri količini koja je nastala za vreme velike brzine izgaranja.

Sličan, mada manje značajan, je proces oslobadjanja fisionih gasova, koji prati ekviaksijalni rast zrna. Scott /13/ je našao da vrednosti za prividni koeficijenat difuzije Xe^{133}, dobijene za uzorke UO_2, odgrevane 6^h u vakuumu, pokazuju diskontinualni porast na temperaturama izmedju 1700 i 1800°C. Srednja vrednost difuzionog koeficijenta na 1800°C, dobijena ekstrapolacijom iz nižih temperatura upotrebljavajući aktivacionu energiju od 70 kcal/mol, bila je 200 puta manja od direktno merene vrednosti. Uzorak kod koga je dolazilo do rasta zrna od 32 do 41 μ za vreme odgrevanja od 6^h na 1800°C davao je merenu vrednost za D 15.000 puta veću od ekstrapolisane. Frakciono oslobadjanje Xe za vreme odgrevanja bilo je 9,2%, pri čemu je u 52% zapremine uzorka dolazilo do rasta zrna, odnosno migracije granice zrna. Parker i dr. /14/ nisu našli takvo povećano oslobadjanje gasa kod ozračenih tableta sinterovanog UO_2 (gustine 93% od teorijske), u toku zagrevanja na 1900°C u struji čistog He 5^h. Objašnjenje za ovo neslaganje je činjenica da je u Scottovim eksperimentima dolazilo do redukcije UO_2, što je povećavalo količinu oslobodjenih gasova.

2. PROUČAVANJE OSLOBADJANJA FISIONIH GASOVA IZ GORIVA ZA REAKTORE SNAGE

Proučavanje oslobadjanja fisionih gasova iz goriva uopšte, pogotovu iz goriva za reaktore snage, gde brzina izgaranja prouzrokuje visoke temperature i temperaturni gradijent, odnosno zone različitih struktura, usled kompleksnosti i povezanosti pojava koje utiču na izdvajanje fisionih gasova, nemoguće je izvoditi preko uprošćenog difuzionog modela. S druge strane proučavanje oslobadjanja fisionih gasova u ovakvim uslovima, predstavlja osnovno polje interesa sa aspekta razvoja gorivnih elemenata za vodom hladjene reaktore.

REšavanje ovog problema vrši se u eksperimentima preko kojih se količine oslobodjenih fisionih produkata povezuju sa pojedinim merljivim veličinama (parametrima gorivnih elemenata). Pri tome se vrši analiza uticaja pojedinih faktora na oslobadjanje fisionih gasova. Kroz ovu analizu vrši se izbor veličina koje se zatim na osnovu eksperimentalnih rezultata za date uslove preko empiriskih izraza povezuju sa količinom oslobodjenih fisionih gasova.

U analizi uticaja pojedinih faktora (karakteristika goriva i gorivnih elemenata, kao i uslova ozračivanja) na oslobadjanje fisionih gasova treba istaći pre svega njihovu medjusobnu zavisnost. Pri tome se u razmatranjima polazi od mogućih mehanizama izdvajanja, odnosno migracije gasova za odgovarajuće uslove.

2.1. Uticaj temperature

Svakako osnovni parametar koji odredjuje količinu oslobodjenih fisionih gasova u gorivu datih karakteristika je

temperatura.

U temperaturnoj oblasti gde je difuzija kroz rešetku kontrolni mehanizam izdvajanja, sa podizanjem temperature raste koeficijent difuzije, pa prema tome i količina oslobodjenih fisionih gasova. Na temperaturama na kojima dolazi do sinterovanja, podizanje temperature smanjuje poroznost odnosno ukupnu slobodnu površinu. S druge strane, istovremeno dolazi do porasta konstante difuzije. Podizanje temperature iznad 1600°C dovodi do strukturnih promena, ekviaksijalnog, stubičastog rasta zrna i topljenja goriva pri čemu dolazi do povećanog izdvajanja fisionih gasova.

Posmatrajući gorivo u kome postoji temperaturni gradijent, uticaj temperature na izdvajanje fisionih gasova treba razmatrati kroz oblik raspodele temperature. S obzirom da se neuporedivo najveća količina gasova izdvaja u temperaturnoj oblasti visokih temperatura u kojima se dešavaju strukturne promene analizu uticaja temperature, kao uostalom i ostalih faktora na oslobadjanje fisionih gasova iz goriva najispravnije je vršiti kroz procenu uticaja datog faktora na temperaturnu raspodelu, odnosno veličinu i karakter strukturnih promena u gorivu.

Kako je integralna provodljivost $\int k(T)dT$ veličina koja je proporcionalna i iz koje se procenjuje raspodela temperature u gorivu mnogi autori su povezivali količinu oslobodjenih fisionih gasova sa njom /15, 16/.

Za uzorke sličnih karakteristika ozračenih pod jednakim uslovima utvrdjena je proporcionalnost izmedju integralne provodljivosti i količine oslobodjenih fisionih gasova(sl. 2) /16/. Sa ove slike se vidi da se za $\int k(T)dT$ veći od 40 /W/cm/ dolazi do povećanog oslobadjanja fisionih gasova. Procenjivanjem raspodele temperature u gorivu ukazuje da ovoj vrednosti $\int k(T)dT$ odgovaraju temperature u gorivu na kojima dolazi do

rasta zrna (ekviaksijalnog i stubičastog). Ovo je uostalom potvrdjeno i mikrostrukturnim ispitivanjem.

Linearna zavisnost oslobadjanja fisionih gasova od integralne provodljivosti potvrdjena je analizom zadržanih fisionih gasova u ozračenom gorivu /17, 18/.

Notley i McEwan /15/ i Nelson /19/ su pokušali da rezultate oslobodjenih fisionih gasova interpretiraju povezivanjem sa količinom goriva u različitim strukturnim zonama, predpostavljajući odredjeni procenat izdvajanja za zonu stubičastog rasta, zonu ekviaksijalnog rasta i zonu nepromenjene strukture. Tako Notley i McEwan predpostavljaju da se u zoni stubičastog rasta i zoni topljenja izdvaja 80% nastalih fisionih gasova, u zoni ekviaksijalnog rasta 33% i zanemarljivo mala količina u zoni nepromenjene strukture. Veličinu zona odredjivali su mikrostrukturnim ispitivanjem punog poprečnog preseka ozračenog goriva. Za date uslove goriva pri ozračivanju dobili su zadovoljavajuće slaganje (tablica 1) uprkos aproksimacije u usvojenim vrednostima količine oslobodjenih fisionih gasova u pojedinim strukturnim zonama.

Ovaj postupak povezivanja količine fisionih gasova preko količine oslobodjenih fisionih gasova u pojedinim strukturnim zonama je u principu sasvim ispravan. Medjutim, za postavljanje korektnih matematičkih odnosa, potrebno je analizom raspodele sadržanih fisionih gasova u gorivu utvrditi stvarne količine oslobodjenih gasova u pojedinim zonama. Isto tako, veličinu strukturnih zona treba meriti mikrostrukturnim ispitivanjima poprečnih preseka goriva duž aksijalne ose ozračenog goriva.

Povezivanje ukupno oslobodjenih fisionih gasova

sa pojedinim temperaturama u gorivu (srednjom/20/ ili temperaturom u centru /21/)je mnogo manje adekvatno.

Usvajajući postavku da je količina oslobodjenih fisionih gasova u gorivu proporcionalna iznosu strukturnih promena u gorivu, raspodeli temperatura (vrednosti maksimalnih temperatura i veličina temperaturnog gradijenta), odnosno vrednosti integralne provodljivosti $\int k(T)dT$, uticaj karakteristika goriva, gorivnih elemenata i uslova ozračivanja na količinu oslobodjenih fisionih gasova može se procenjivati kroz njihov uticaj na strukturne promene i raspodelu temperature u gorivu.

2.2. Uticaj gustine i poroznosti

U uzorcima UO_2 veće gustine usled manje poroznosti, manje specifične površine, oslobadja se manja količina fisionih gasova na nižim temperaturama, gde je oslobadjanje kontrolisano difuzijom. Medjutim, promena gustine i poroznosti ozračenog UO_2 utiče na mnogo značajnije oslobadjanje fisionih produkata pri čemu porozniji uzorci oslobadjaju znatno veće količine fisionih gasova (sl. 3) /15/. Razlike u količini oslobodjenih gasova se ovde ne mogu objasniti uticajem veće odnosno manje površine goriva na izdvajanje kontrolisano difuzijom. U uzorcima niže gustine manja je toplotna provodljivost UO_2 usled čega nastaju veće temperature u centru i otuda veće strukturne promene u gorivu. Ovo je potvrdjeno mikrostrukturnim istraživanjima.

2.3. Uticaj odnosa O/U

Na sličan način se može objasniti uticaj povećanog odnosa O/U na oslobadjanje fisionih gasova u gorivu.

Pokazano je da je difuziona konstanta za Xe^{133} vrlo osetljiva na sadržaj kiseonika. Tako naprimer, difuziona konstanta za U_3O_8 je veća nego za UO_2 /9/.

Uticaj odnosa O/U na difuziju Xe^{133} prikazan je na sl. 4 /22/.

Kao smanjenje gustine, odnos O/U smanjivanjem toplotne provodljivosti goriva dovodi do povećanja temperature u centru i na taj način do većih strukturnih promena. Osim toga, utvrdjeno je da pri povećanom sadržaju kiseonika dolazi do povećanog rasta zrna /15/.

2.4. Uticaj stepena izgaranja i brzine sagorevanja

Kada je reč o uticaju stepena izgaranja na količinu oslobodjenih fisionih gasova ovaj se mora razmatrati jednovremeno sa procenjivanjem brzine izgaranja.

Količina oslobodjenih fisionih gasova pri niskim brzinama izgaranja (izdvajanje kontrolisano difuzijom) raste sa povećanjem stepena izgaranja usled povećanja koncentracije fisionih produkata i produženog vremena izgaranja. Izdvojena količina fisionih gasova u zazor izmedju goriva i košuljice može da smanji toplotni prenos u zazoru, podigne temperaturu u gorivu i na taj način poveća dalje izdvajanje.

Pri visokim brzinama izgaranja do povećanja oslobodjene količine fisionih gasova dolazi usled visokih radnih temperatura goriva i povećane brzine nastajanja fisionih gasova /23/.

U oba slučaja, koji se moraju posmatrati odvojeno, dakle, dolazi do povećanja količine oslobodjenih fisionih gasova sa povećanjem stepena izgaranja.

LITERATURA

1. D.I. Sinizer i dr., Proc. Conf. New Nuclear Materials Including Non-Metalic Fuels, 2, 311, 1963, Vienna

2. W.B. Lewis, AECL-DM-58, 1960

3. B.G. Childs, J. of Nucl. Mat., 9, 3, 217-244, 1963

4. A.H. Booth and E.F. Rymer, CRDC - 720, 1958

5. J.D. Eichenberg i dr., WAPD - 183, 1957

6. A.H. Booth, CRDC - 721, 1957

7. B. Lustman, WAPD - 173, 1957

8. J. Crank, The Mathematics of Diffusion, Clavendon Press, Oxford, st. 84, 1956

9. W.B. Cottrell i dr., ORNL - 2935, 1960

10. A.H. Booth, DCI - 27, 1957

11. M.W. Rosenthal, ORNL - EF - 59-11-24, 1959

12. W.B. Lewis, AECL-D1-34, 1958

13. J.L. Scott i D.F. Toner, ORNL-3102, 1961

14. G.W. Parker i dr., ORNL-CF-60-12-14, 1961

15. M.J. Notley i J.R. McEwan, AECL-2230, 1965

16. M. Stevanović i S. Djurle, AE raport (u štampi)

17. W.W. Morgan i dr. AECL - 1249, 1961

18. W.B. Lewis i dr.,Third Conf. Geneva, A/Conf. 28/P/19, 1964

19. Nelson L., GEAP - 5472, 1964

20. J.A.L. Robertson i dr., Third Inter. Conf. Geneva A/Conf. 28/P/17, 1964

21. J.A.L. Robertson, Proc. Conf. New Nuclear Materials Including Non Metalic Fuels, 2, 57, 1963, Vienna

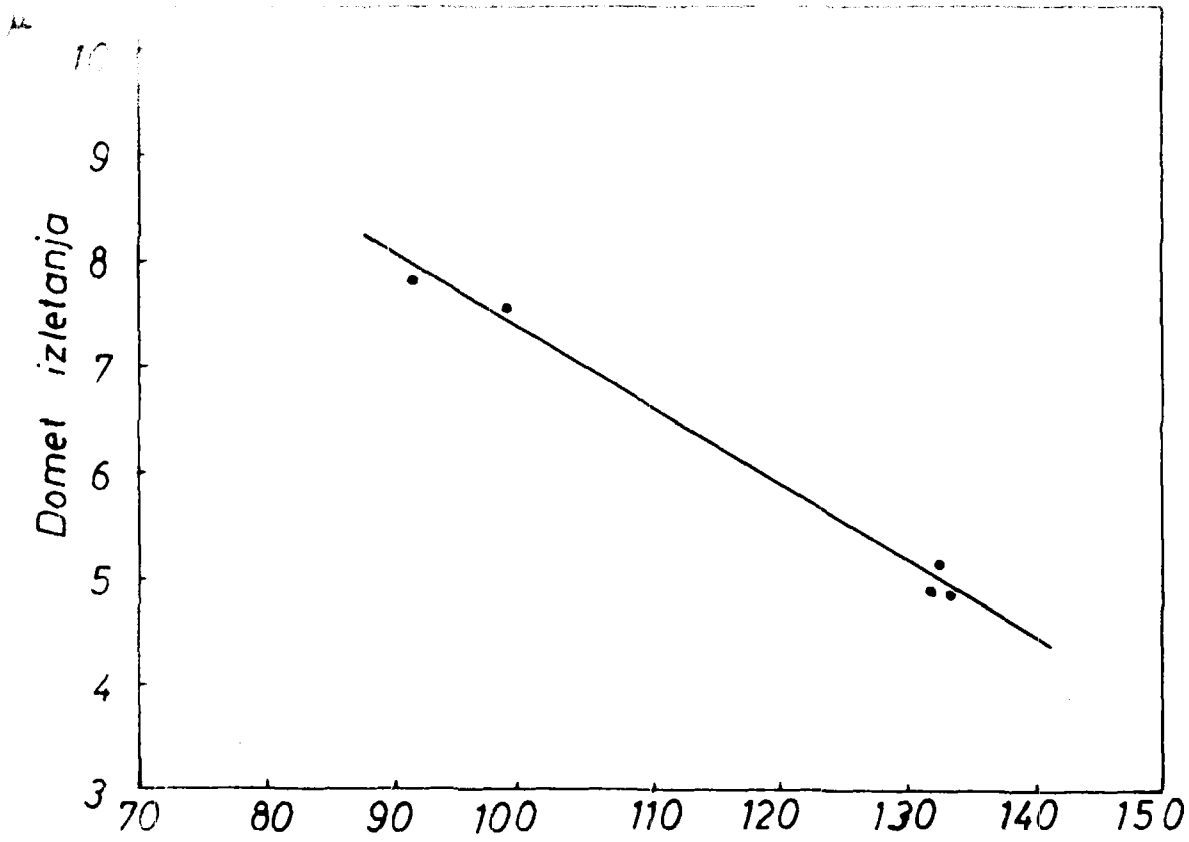
22. U. Runfors, AE-RMB-930, 1966

23. M.L. Bleiberg i dr., Proc. Conf. New Nuclear Materials Including Non Metalic Fuels, 2, 366, 1963, Vienna

TABELA 1

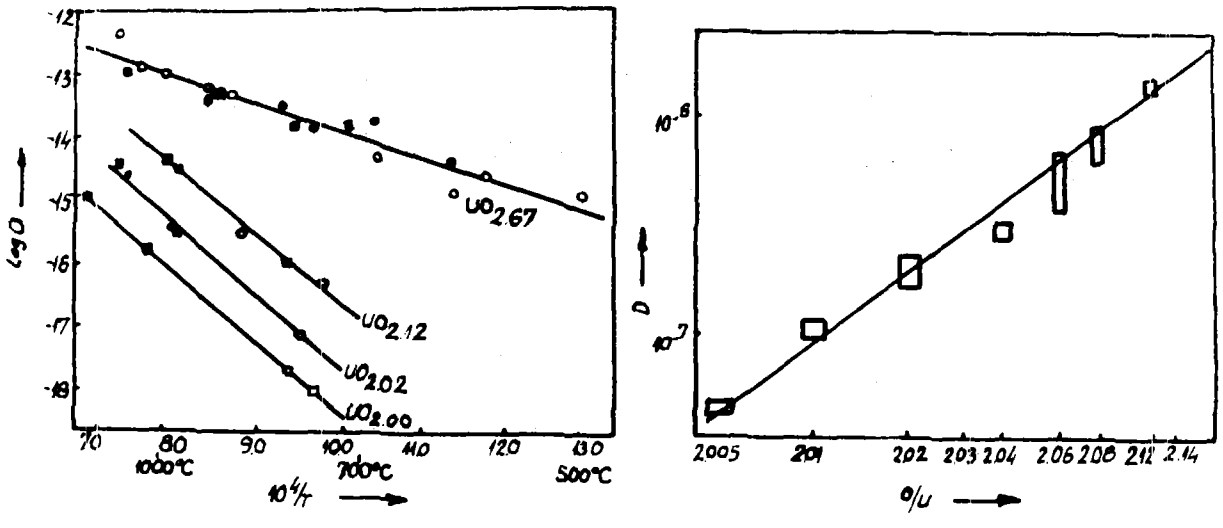
Oslobadjanje fisionih gasova

gustina (gr/cm^3)	$\int_{Ts}^{Tc} kdT$ (w/cm)	Zona rasta zrna		Odnos količine gasa nastale u zoni rasta zrna prema prosečnoj u gorivu		Predvidjeno oslobadjanja gasa (33% iz zone aksijalnog i 80% iz zone stubičastog rasta zrna) (%)	Izmerena količina oslobodjenog Xe (%)
		ekviaksijalnog	stubičastog	ekviaksijalni	stubičasti		
10.74	42.0	0.164	0.096	0.87	0.81	10.6	12.3
10.66	41.0	0.141	0.109	0.87	0.81	11.1	14.1
10.55	40.9	0.085	0.185	0.88	0.84	14.8	15.3
10.42	40.6	0.08	0.22	0.91	0.85	17.3	16.8
10.73	43.0	0.133	0.137	0.87	0.82	12.8	14.9
10.65	43.5	0.116	0.194	0.89	0.83	16.3	15.7
10.52	43.8	0.087	0.203	0.89	0.84	16.3	16.5
10.44	42.5	0.07	0.26	0.91	0.86	20.0	18.8

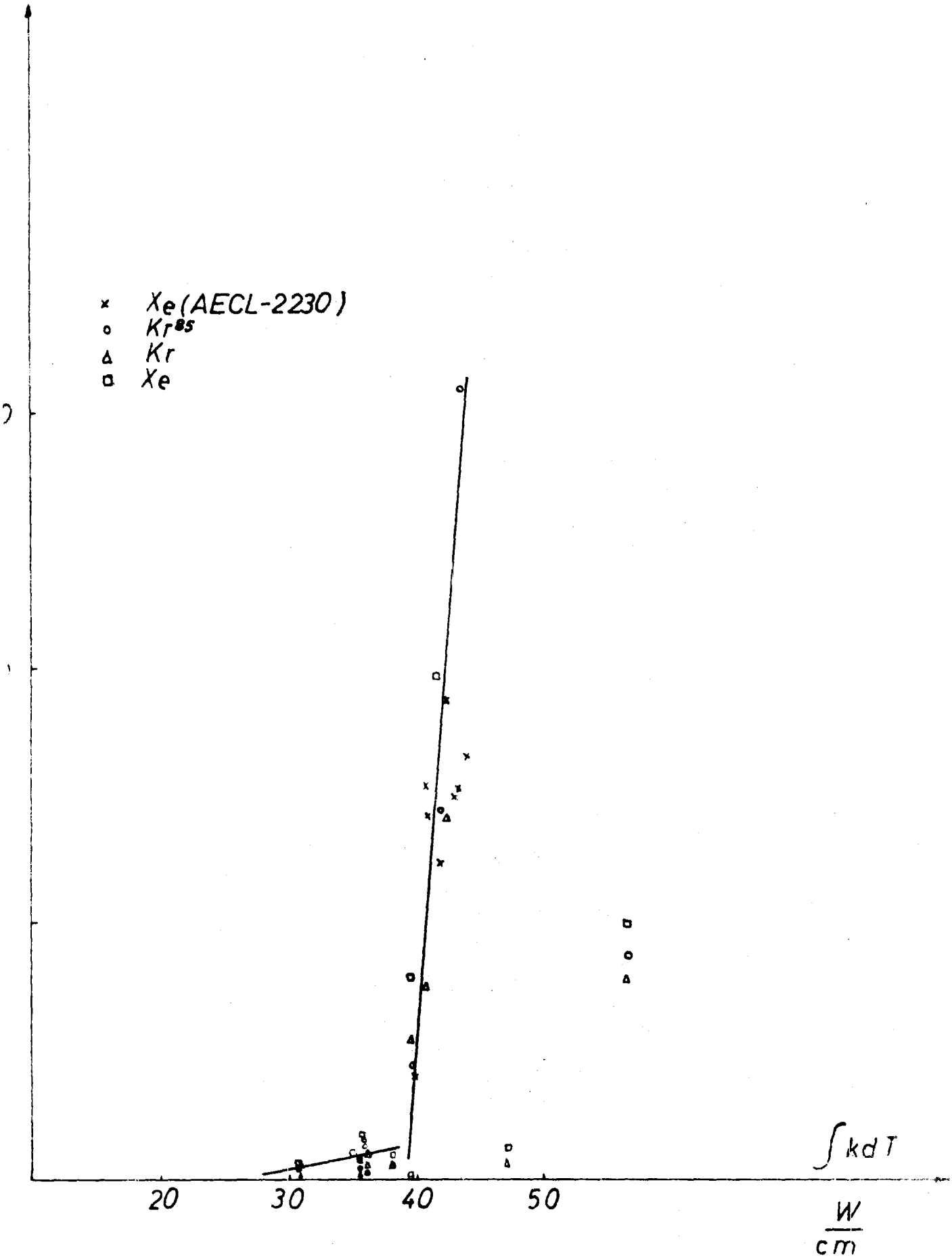


Masa fisionog fragmenta

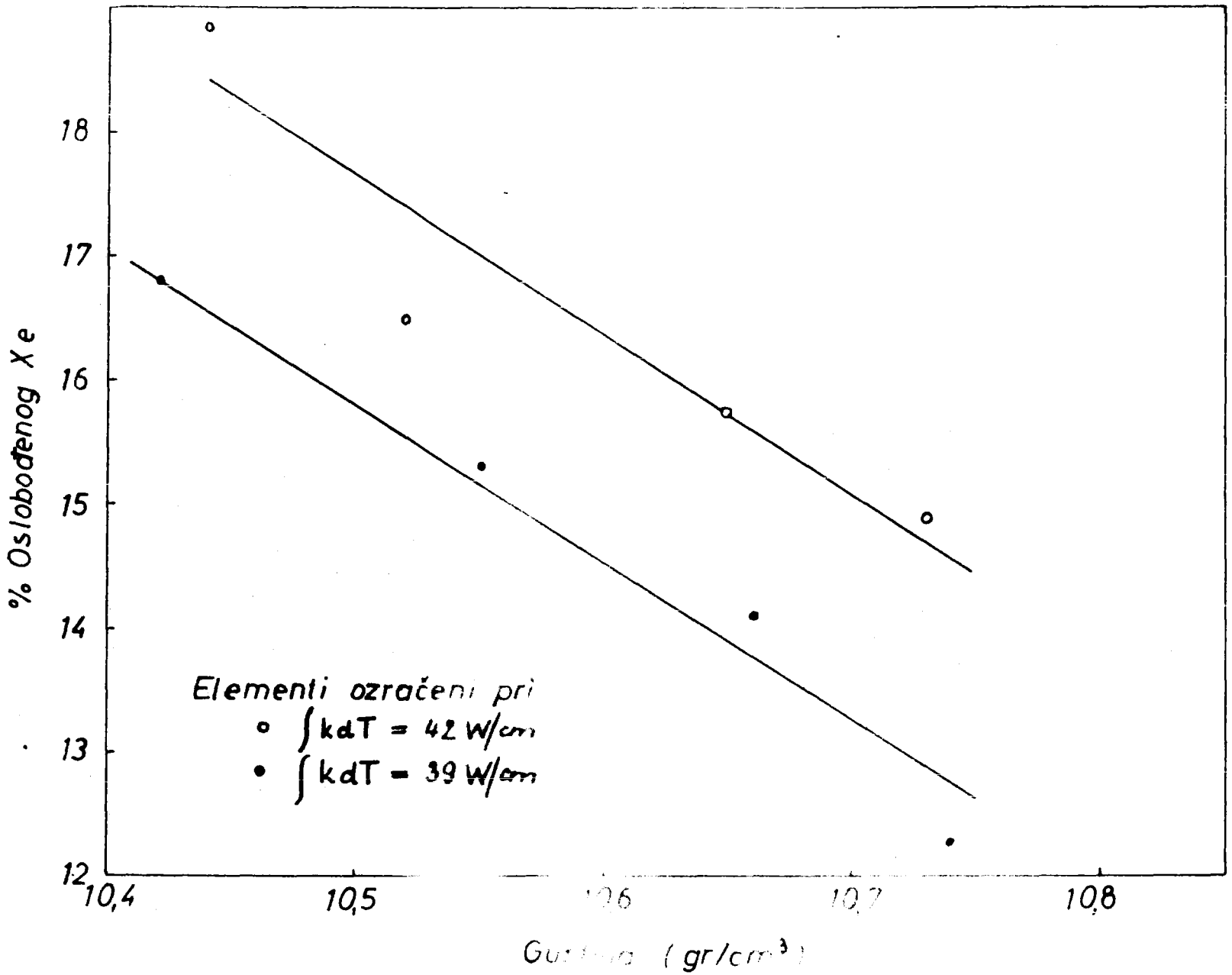
Sl. 1



Sl. 4



Sl. 2


% Oslobođenog Xe
18
17
16
15
14
13
12
10,4
10,5
10,7
10,8
Elementi ozračeni pri
∫kdT = 42 W/cm
∫kdT = 39 W/cm