

УДК 621.039.542.34:536.2:666.3

Н.А. ДЕГТЯРЕВ*, О.А. БАХТЕЕВ*, А.В. ЛЫСИКОВ*, Е.Н. МИХЕЕВ*, В.А. СОЛОНЕНКО**,
А.А. ЯЩУК**, В.Г. БУТОВ**, А.А. ДЕМИДЕНКО**

МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССА СПЕКАНИЯ ТОПЛИВНЫХ ТАБЛЕТОК ИЗ ДИОКСИДА УРАНА В ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ ПЕЧАХ

Представлена математическая модель процесса спекания, численно реализованная с использованием метода конечных объемов. Приведены характеристики топливных таблеток, полученные при помощи моделирования различных режимов спекания. Проведено сравнение полученных результатов с экспериментальными данными.

Ключевые слова: численное моделирование, процесс спекания, диоксид урана, топливные таблетки, плотность, произвольная и упорядоченная укладка.

Спекание топливных таблеток является основной заключительной стадией технологического процесса их получения. В этом процессе важную роль играют как все физико-химические и технологические свойства исходного порошка, так и все предыдущие технологические операции. Процесс спекания сопровождается уплотнением, рекристаллизацией и слиянием пор, кроме того, спеканию могут сопутствовать химические и фазовые превращения, релаксация напряжений различного происхождения и т. д. Каждый из этих процессов оказывает влияние на конечные характеристики спеченных таблеток и их качество. В связи с необходимостью учета всех этих факторов для получения наилучшего результата необходим выбор оптимального режима спекания, что на практике приводит к большим временным и экономическим затратам.

Целью проведенной работы являлось моделирование процесса спекания таблеток из диоксида урана при произвольной и упорядоченной укладке прессовок в лодочке и верификация разработанной модели с помощью полученных экспериментальных данных.

Представленная модель рассматривает процесс тепломассообмена топливной таблетки при произвольном расположении таблеток в лодочке при спекании в высокотемпературных печах. Расчеты выполнены для таблеток, используемых в водо-водяных ядерных реакторах (ВВЭР) при разных периодах спекания, расходах водорода и температурах по зонам печи. Влияние значения «сырой» плотности таблеток, кислородного коэффициента, точки росы, наличие в таблетке закиси-оксида урана (U_3O_8) в принятой модели учитывалось путем использования различных главных кривых спекания, полученных на основе анализа экспериментальных данных. Построенная на основе выбора определяющих уравнений и допустимых упрощений модель, учитывающая основные механизмы теплообмена внутри лодочки с различной укладкой топливных таблеток и теплофизические свойства участвующих в процессе веществ, позволяет определять температурный режим внутри лодочки в любой момент времени.

Разработка модели спекания, в частности расчет тепломассообмена топливных таблеток при произвольном расположении в лодочке, позволит оценить влияние параметров процесса спекания на физико-химические свойства готовой продукции и прогнозировать их изменение при изменении условий процесса. Таким образом, разработчики нового топлива могут использовать созданную модель для оптимизации его параметров.

При построении модели была использована геометрия и режимы реальной высокотемпературной печи для спекания.

Для математической постановки задачи, описывающей нестационарный процесс движения газовой среды вокруг лодочки и внутри нее, с учетом всех видов теплообмена в трехмерном случае используются следующие основные соотношения:

– уравнение неразрывности газовой фазы

$$\frac{\partial(\rho)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_j) = 0; \quad (1)$$

– уравнение сохранения импульса

$$\frac{\partial(\rho u_i)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_i u_j) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j}; \quad (2)$$

$$\tau_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \mu \delta_{ij} \frac{\partial u_i}{\partial x_j}, \quad (3)$$

где x_i – декартовы координаты; $\mu = \mu(T)$ – коэффициент вязкости; $\delta_{ij} = 1$ для $i = j$ и $\delta_{ij} = 0$ при $i \neq j$, $i = 1, 2, 3$;

– уравнение сохранения энергии

$$\frac{\partial(\rho h_0 - p)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_j h_0) = \frac{\partial}{\partial x_j}(u_i \tau_{ij}) + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x_j} \right). \quad (4)$$

В этих уравнениях u_i, u_j – компоненты вектора скорости; p – давление; ρ, T – плотность и температура газовой смеси; h_0 – полная энтальпия газа.

Уравнение теплопроводности для твердых веществ (материалы стенки лодочки и топливных таблеток), входящих в модель, имеет вид

$$\frac{\partial(\rho_s C_{ps} T_s)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\lambda_s \frac{\partial T_s}{\partial x_j} \right), \quad (5)$$

где ρ_s, C_{ps} и λ_s – плотность, теплоёмкость и коэффициент теплопроводности материалов твердых веществ.

Для моделирования радиационного теплообмена на внешней поверхности твердой поверхности задается лучистый тепловой поток в окружающее пространство:

$$q_w = \varepsilon \sigma (T_w^4 - T^4), \quad (6)$$

где ε – степень черноты (зависит от материала); $\sigma = 5.6704 \cdot 10^{-8}$ Дж/(с · м · К⁴); T_w – температура стенки.

На всех твердых поверхностях для вектора скорости газа задается условие $\mathbf{u} = 0$. На внутренних поверхностях стенок печи, не являющихся нагревателями, задается условие теплоизоляции. На тех поверхностях, где стоят нагреватели, задается температура T , равная температуре нагревателя, которая меняется в зависимости от режимов работы рассматриваемой печи. Степень черноты ε в уравнении радиационного теплообмена определяется как 0.75 для кирпичных стенок и 0.3–0.83 для металлических поверхностей. Граничное условие для температуры для поверхностей «газ – лодочка» и «газ – укладка керамических образцов» определяется условием сопряженного теплообмена.

Плотность керамического образца в процессе спекания предлагается определять, используя подход на основе главной кривой спекания [1]. Данный подход был впервые предложен в работе [2] и позволяет на основе истории изменения температур таблетки определять ее плотность при спекании и для настройки. Главная кривая спекания может быть использована для описания спекания, в котором ведущую роль играют процессы объемной или граничной диффузии, что справедливо для рассматриваемого случая и требует экспериментальных данных по плотностям на разных стадиях спекания.

В рассматриваемом случае эта переменная спекания определяется как

$$\Theta = \int \frac{1}{T} \exp\left(-\frac{E_A}{RT}\right) dt, \quad (7)$$

где T – температура, К; E_A – энергия активации, кДж/моль; R – универсальная газовая постоянная; t – время, с.

Для проведения расчетов с помощью построенной модели спекания использовались следующие параметры, способные оказать влияние на процесс спекания таблеток из диоксида урана:

- количество закиси-оксида урана в пресспорошке;
- «сырая» плотность прессовок;
- температурный режим печи;
- период спекания;
- расход водорода;
- точка росы.

Остальные параметры либо постоянны, либо не влияют на процесс спекания.

Точка росы измеряется только в начале спекания и неотделима от температурного режима.

Период спекания – это время, за которое лодочка сдвигается на свою длину. Данный параметр определяет продолжительность спекания. Таким образом, период спекания заметно влияет на плотность спеченных таблеток и является одним из важнейших показателей для построения главной кривой спекания.

Для учета влияния расхода водорода на процесс спекания в водородной среде было проведено определение проницаемости укладки для случаев упорядоченного и произвольного расположения керамических образцов в лодочке. В результате проницаемость упорядоченной укладки составляла $(4-5) \cdot 10^{-7} \text{ м}^2$ для случая неспекенных образцов в начале цикла и $(5-8) \cdot 10^{-7} \text{ м}^2$ в конце процесса спекания. Для случая неупорядоченной укладки проницаемость составляет около $2 \cdot 10^{-6} \text{ м}^2$.

На рис. 1 представлена конечно-объемная модель, используемая в расчетах.

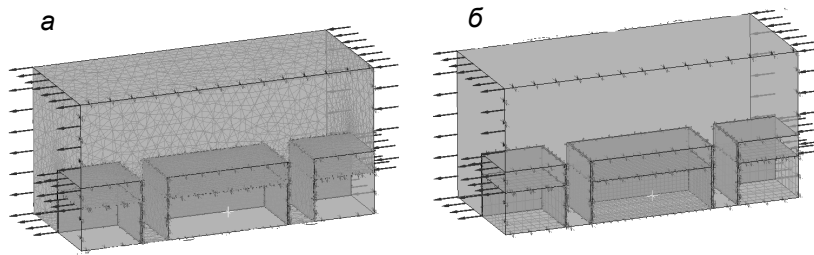


Рис. 1. Расчетные области, соответствующие течению газа (а) и пористой укладке керамических образцов в лодочках (б)

Расчеты показали, что изменение расхода водорода слабо влияет на параметры спеченных таблеток, поскольку доля в тепломассообмен за счет конвекции при спекании мала. Водород обеспечивает требование обеспечения восстановительной среды во время спекания.

«Сырая» плотность таблеток в диапазоне плотностей $5.3-6.3 \text{ г/см}^3$ оказывает заметное влияние на плотность спекаемых таблеток из диоксида урана.

Учет большинства определяющих факторов (кроме температуры) может проводиться либо корректировкой главной кривой спекания в зависимости от экспериментальных данных этих факторов, либо корректировкой энергии активации. Основное влияние на энергию активации оказывает количество закиси-оксида урана. Поэтому в расчетах основным «подбираемым» параметром выступала энергия активации. При этом было замечено, что при изменении остальных параметров удастся удовлетворительно согласовать результаты для содержания закиси-оксида урана в диапазоне 7–15 %.

При проведении моделирования рассматривались два температурных режима по восьми зонам печи (табл. 1). Исходные данные и результаты моделирования приведены в табл. 2 и 3.

Таблица 1

Температурные режимы спекания по зонам печи, °С

Вариант	1 зона	2 зона	3 зона	4 зона	5 зона	6 зона	7 зона	8 зона
1	400	500	600	1100	1300	1660	1790	1760
2	400	500	440	1150	1200	1760	1775	1770

Таблица 2

**Параметры «сырых» и спеченных таблеток и процесса спекания таблеток типа ВВЭР
в восьмизонной печи (первый режим)**

№ варианта		I.1	I.2	I.3	I.4	I.5
Кол-во U ₃ O ₈ , %		15	15	15	7	15
«Сырая» плотность, г/см ³		6.16	6.09	6.01	5.65	6.01
Температура по зонам, °C	1	545	545	545	455	545
	2	645	645	645	555	645
	3	795	795	795	705	795
	4	1095	1095	1095	1005	1095
	5	1195	1195	1195	1105	1195
	6	1765	1750	1765	1765	1765
	7	1765	1750	1765	1765	1765
	8	1765	1750	1765	1765	1765
Расход водорода по зонам, л/мин	1- 3зона	80	80	80	100	80
	4-5 зона	80	80	80	140	80
	6-8 зона	80	80	80	140	80
Точка росы, °C		25.2	27.8	27.5	24.8	26.3
Период спекания, мин		45	36	30	60	45
Экспериментальная плотность, г/см ³		10.60	10.59	10.60	10.65	10.58

Таблица 3

**Параметры «сырых» и спеченных таблеток и процесса спекания таблеток типа ВВЭР
в восьмизонной печи (второй режим)**

№ варианта		II.1	II.2	II.3	II.4
Кол-во U ₃ O ₈ , %		12.01	12.01	12	12
«Сырая» плотность, г/см ³		5.35	5.70	5.77	5.75
Масса «сырой» таблетки, г		6.489	6.542	5.138	5.156
Температура по зонам, °C	1	400	400	400	400
	2	500	500	500	500
	3	600	600	440	600
	4	1100	1100	1150	1100
	5	1300	1300	1200	1300
	6	1660	1660	1760	1660
	7	1790	1790	1775	1790
	8	1760	1760	1770	1760
Расход водорода по зонам, л/мин	1-3 зона	50	50	50	50
	4-5 зона	80	50	50	50
	6-8 зона	120	100	100	100
Точка росы, °C		25.3	29.6	16.8	28.0
Период спекания, мин		30	27	33	30
Экспериментальная плотность, г/см ³		10.55	10.53	10.513	10.491

На рис. 2–4 представлены результаты расчета, на которых показан характер обтекания лодочки водородом и изображены линии тока вокруг и внутри лодочки, а также распределение давления по поверхности лодочки и укладки таблеток.

Данные результаты носят общий характер, поэтому отдельно для каждого рассматриваемого случая они не приводятся.

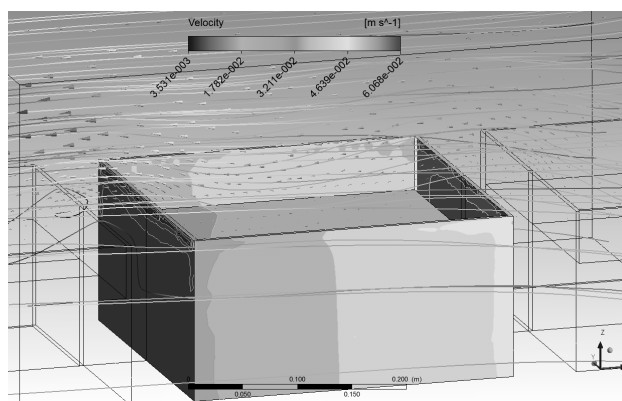


Рис. 2. Обтекание лодочки водородом (с указанием значений скорости)

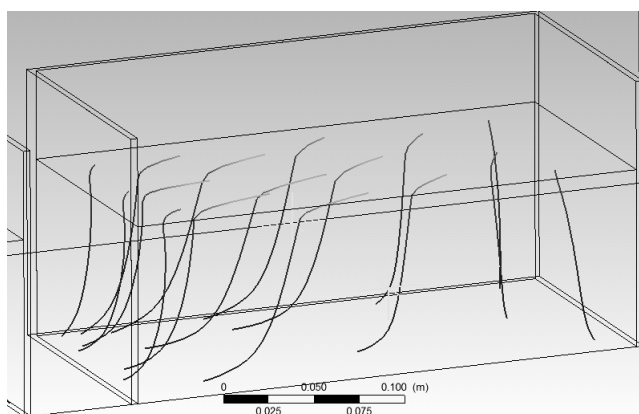


Рис. 3. Движение газа внутри укладки

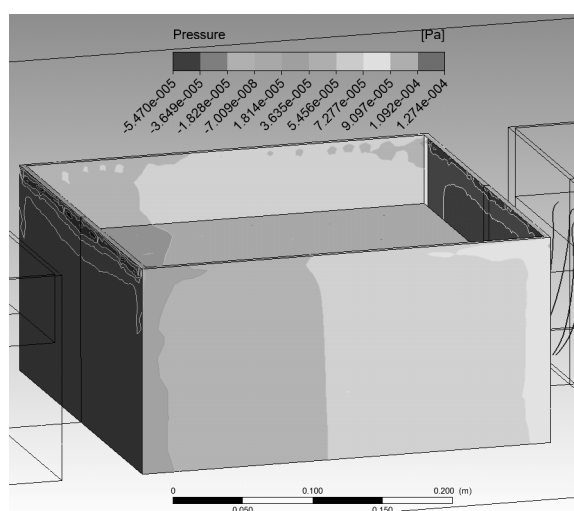


Рис. 4. Обтекание лодочки водородом (с указанием распределения избыточного давления по поверхности лодочки и укладки таблеток)

Основные результаты представляют собой

- «максимальные» и «минимальные» значения плотности спекаемых таблеток, определяемые по распределениям;

- графики зависимости плотности спекаемых таблеток от времени для точек в центре лодочки (красным) и у края (синим);
- графики изменения температуры внутри укладки таблеток в зависимости от времени для точек в центре лодочки (красным) и у края (синим). Из результатов видно, что качественно и количественно результаты согласуются с результатами эксперимента.

Поскольку результаты носят общий характер, поэтому отдельно для примера представлены результаты, полученные для варианта I.1 (рис. 5–7).

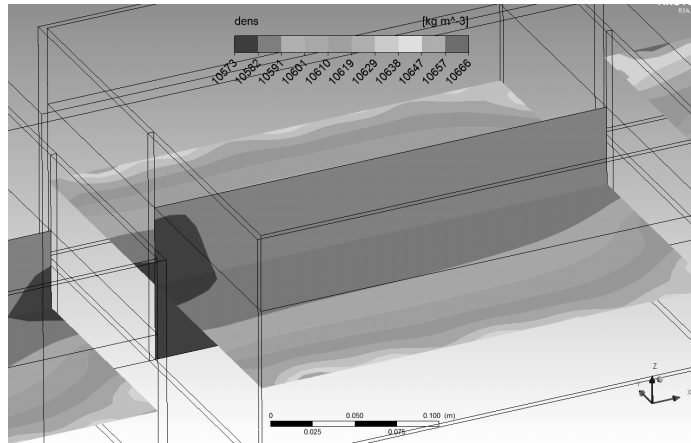


Рис. 5. Изолинии распределения плотности спекаемых таблеток на выходе из печи

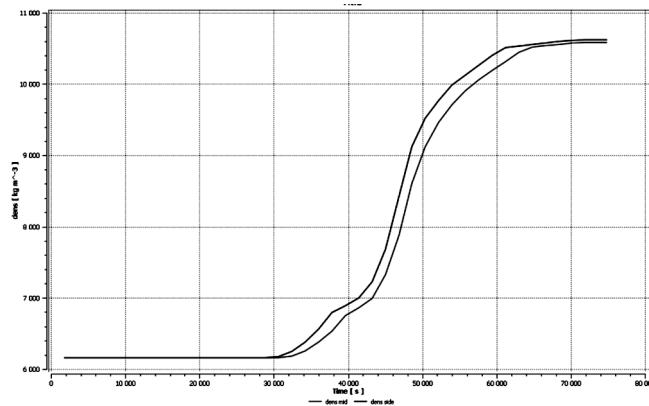


Рис. 6. График кривой плотности таблеток в зависимости от времени варианта I.1 (центр лодочки – красный, край лодочки – синий)

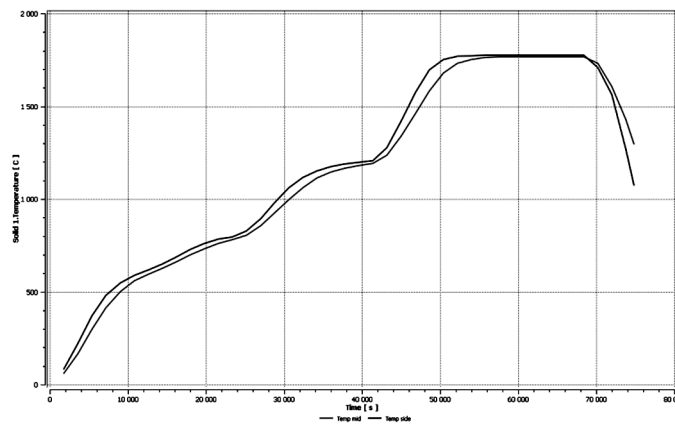


Рис. 7. График кривой температуры от времени варианта I.1 (центр лодочки – красный, край лодочки – синий)

В табл. 4 и на рис. 8 представлено сравнение расчетных и экспериментальных значений плотности спеченных таблеток.

Таблица 4

Расчетные и экспериментальные значения плотности

№ варианта		I.1	I.2	I.3	I.4	I.5	II.1	II.2	II.3	II.4
Плотность, г/см ³	Экспер.	10.60	10.59	10.60	10.65	10.58	10.55	10.53	10.51	10.49
	Расчет	10.58–10.60	10.51–10.54	10.47–10.53	10.68–10.70	10.58–10.62	10.44–10.52	10.37–10.47	10.53–10.57	10.46–10.53

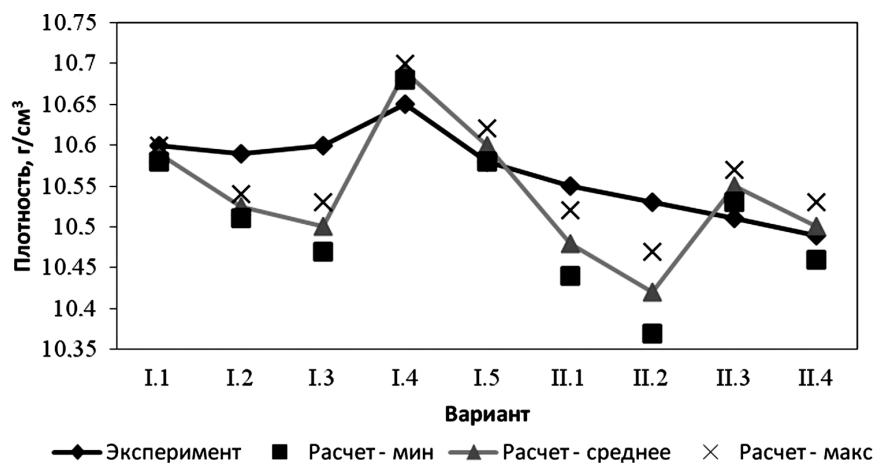


Рис. 8. Сравнение расчетных и экспериментальных значений плотности спеченных таблеток

Из данных, представленных в табл. 4 и на рис. 8, следует, что результаты численного эксперимента качественно и количественно согласуются с результатами экспериментальных данных, полученных с использованием восьмизонной печи.

Таким образом, построенная модель позволяет достаточно точно провести расчет реального процесса спекания в промышленных печах и на его основе прогнозировать плотность таблетки в процессе спекания при различном ее расположении в лодочке.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Sintering of Advanced Materials / ed. Zh.Z. Fang. – Woodhead Publishing Limited, 2010. – 483 p.
2. Su H. and Johnson D.L. Master Sintering Curve: A Practical Approach to Sintering // J. Am. Ceram. Soc. – 1996. – V. 79. – No. 12, – P. 3211-7.
3. Fink J.K. Thermophysical properties of uranium dioxide // J. Nucl. Mater. – 2000. – V. 279. – P. 1–18.
4. Thermophysical properties database of materials for light water reactors and heavy water reactors. IAEA. – Vienna, 2006. IAEA-TECDOC-1496.
5. Beere W. The sintering and morphology of interconnected porosity in UO₂ powder compacts // J. Mater. Sci. – 1973. – V. 8. – P. 1717–1721.
6. Burton B., Reynolds G.L. The sintering of grain boundary cavities in uranium dioxide // J. Nucl. Mater. – 1972. – V. 45. – P. 10–17.
7. Жиганов А.Н., Гузеев В.В., Андреев Г.Г. Технология диоксида урана для керамического ядерного топлива. – Томск: STT, 2003. – 328 с.

*Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. акад. А.А. Бочвара, г. Москва, Россия

**Национальный исследовательский Томский государственный университет, г. Томск, Россия

E-mail: mikheev@bochvar.ru; rainbow@niipmm.tsu.ru

Поступила в редакцию 12.09.14.

Дегтярев Никита Александрович, инженер-технолог;
 Бахтеев Олег Александрович, инженер-технолог;
 Лысиков Александр Владимирович, к.ф.-м.н., зам. начальника отдела;
 Михеев Евгений Николаевич, к.ф.-м.н., начальник отдела;
 Солоненко Виктор Александрович, к.ф.-м.н., зав. лабораторией;
 Ящук Алексей Александрович, к.ф.-м.н., ст. науч. сотр.;
 Бутов Владимир Григорьевич, д.ф.-м.н., зав. отделом;
 Демиденко Анатолий Адамович, к.т.н., зав. отделом.

N.A. DYAGTEREV, O.A. BAHTEEV, A.V. LYSIKOV, E.N. MIKHEEV, V.A. SOLONENKO,
A.A. YASHCHUK, V.G. BUTOV, A.A. DEMIDENKO

MATHEMATICAL MODELING OF THE SINTERING PROCESS OF THE URANIUM DIOXIDE FUEL PELLETS IN THE HIGH TEMPERATURE FURNACE

In the paper mathematical model of the sintering process is presented. The method of finite volume was used for numerical solution. As a result, the characteristics of the fuel pellets calculated with help of mathematical modeling of different sintering regime are provided. The comparison of the results with the experimental data is carried out.

Keywords: numerical modelling, sintering process, fuel pellets, density, arbitrary and ordered stacking.

REFERENCES

1. Fang Zh.Z. (ed.). *Sintering of Advanced Materials*. Woodhead Publishing Limited, 2010, 483 p.
2. Su H. and Johnson D.L. Master Sintering Curve: A Practical Approach to Sintering. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1996, vol. 79, no. 12, pp. 3211-7.
3. Fink J.K. Thermophysical properties of uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 2000, vol. 279, pp. 1–18.
4. *Thermophysical properties database of materials for light water reactors and heavy water reactors*. IAEA. Vienna, 2006 IAEA-TECDOC-1496.
5. Beere W. The sintering and morphology of interconnected porosity in UO_2 powder compacts. *Journal of Material Science*, 1973, vol. 8, pp. 1717–1721.
6. Burton B., Reynolds G.L. The sintering of grain boundary cavities in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 1972, vol. 45, pp. 10–17.
7. Zhiganov A.N., Guzeev V.V., Andreev G.G. *Tehnologija dioksida urana, kak keramicheskogo jadernogo topliva* (Technology of Uranium Dioxide as Ceramic Nuclear Fuel). Tomsk, 2003, 328 p.