



## تصحیح مدل هدایت حرارتی سوخت $UO_2$ در ساختار فرسایش بالا

بهاره روستایی<sup>۱\*</sup>، حسین کاظمی نژاد<sup>۲</sup>، صمد خاکشورنیا<sup>۳</sup>

۱- سازمان انرژی اتمی- پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای- پژوهشکده راکتور

۲- سازمان انرژی اتمی- پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای- پژوهشکده کاربرد پرتوها

۳- سازمان انرژی اتمی- پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای- پژوهشکده فیزیک و شتابگرها

### چکیده:

هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$  تحت تابش درون راکتور با افزایش فرسایش به علت ایجاد تخلخل دستخوش تغییر می‌گردد. در این مقاله تحول تورم و تخلخل ماتریس سوخت، با استفاده از یک مدل تورم ماتریس سوخت ناشی از گازهای شکافت که در محدوده دما پایین معتبر است، تا فرسایش  $120 \text{ MWd/KgU}$  و در ناحیه ساختار فرسایش بالا (HBS) محاسبه شد. برای مطالعه تحول تورم و تخلخل بر روی هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$  تابش دیده، رابطه تجربی هدایت حرارتی HALDEN انتخاب شده است که با یک ضریب تصحیح تخلخل پیشنهادی، ترکیب می‌گردد. با در نظر گرفتن تحول تخلخل با فرسایش، کاهش در حدود ۲۵٪ در هدایت حرارتی سوخت مشاهده می‌شود که افزایش موضعی دمای سوخت را در بر خواهد داشت. همچنین نتایج محاسبات توافق خوبی را با داده‌های تجربی نشان داد.

**کلمات کلیدی:** هدایت حرارتی، تورم ماتریس سوخت، تخلخل، ساختار فرسایش بالا

### مقدمه :

هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$  تحت عوامل زیادی نظیر دما، تخلخل، محصولات شکافت، تغییر ریزساختار سوخت و ایجاد ساختار فرسایش بالا، استوکیومتری و آسیب تابشی تحت تاثیر قرار می‌گیرد. اما در این بین تعیین اثر تخلخل بر روی آن نسبت به سایر عوامل ذکر شده بسیار پیچیده تر است. همانطور که می‌دانیم تخلخل اولیه هنگام ساخت<sup>۱</sup> (عموما حدود ۳٪ تا ۱۰٪) از ابتدا در سوخت وجود دارد. اتم‌های گاز ناشی از فرایند شکافت در ماتریس سوخت غیر قابل حل بوده و در حباب‌های درون‌دانه‌ای<sup>۲</sup> و مرزدانه‌ای انباشته می‌گردد که در تورم سوخت و تولید تخلخل سهیم است. با افزایش فرسایش در شرایط دمایی پایین، سوخت  $UO_2$  تحت فرایند تبلور مجدد القایی تابش<sup>۳</sup> قرار می‌گیرد. تبلور مجدد از مرز دانه آغاز و به سمت مرکز دانه پیش رفته تا این که کل دانه تبلور مجدد شود. دانه‌های بزرگ به دانه‌های کوچک تر مبدل می‌شود. بنابراین جذب اتم‌های گاز بیشتر در مرز دانه صورت می‌گیرد و در نتیجه حباب-های مرزدانه‌ای بزرگی تولید خواهد شد که سهم عمده‌ای از تولید تورم ناشی از حباب گاز و تخلخل نظیر آن را دارا است [۱-۳].

<sup>1</sup> As-fabricated porosity

<sup>2</sup> Intragranular

<sup>3</sup> Irradiation-induced recrystallization



روابط تجربی و تحلیلی مختلفی برای توصیف اثر تخلخل روی هدایت حرارتی توسعه یافته است. لُثب [۴] و کمپف و همکاران [۵] با در نظر گرفتن یک سلول واحد از ماده متخلخل، به صورت یک مکعب از ماده جامد که یک تخلخل گازی را احاطه کرده است، یک عبارت تحلیلی برای اثر تخلخل روی هدایت حرارتی به دست آوردند. بعد از آن، مدل آنها به صورت متوالی در کد DART برای مدل سازی هدایت حرارتی سوخت پاشیده<sup>۱</sup> مورد استفاده قرار گرفت [۶]. مطالعات بر روی هدایت حرارتی ساختار فرسایش بالا و مشاهدات تجربی افزایش تخلخل در این ناحیه از قرص  $UO_2$  [۷]، به طرح روابط مختلفی برای تحول تخلخل با فرسایش در این ناحیه انجامید [۸]. در کار دیگری اسپینو و همکاران [۹] رابطه ای برای تورم کلی ماتریس به دست آوردند که مرتبط با چگالی و تخلخل توده سوخت<sup>۲</sup> است. در این کار، با محاسبه تورم کلی ماتریس و اندازه گیری چگالی توده سوخت، تحول تخلخل در سوخت  $UO_2$  تابش دهی شده بر حسب فرسایش تعیین می شود. اما نکته ای که باید مورد توجه قرار گیرد این است که تخلخل معرفی شده در کار اسپینو در حقیقت تخلخلی (حجم خالی<sup>۳</sup>) است که سهمی از تورم ماتریس سوخت ندارد در صورتی که تورم ماتریس ناشی از حباب های گاز شکافت در تولید تخلخل کل سهم است و می تواند به صورت جمله ای به سهم تخلخل (حجم خالی) اضافه گردد. کار اسپینو، باعث ایجاد انگیزه شد تا در مقاله قبلی نویسندگان [۱۰] رابطه ای برای تخلخل حجمی کل سوخت تابش دهی شده متشکل از دو بخش تخلخل و تخلخل تورمی فراهم گردد. در مقاله حاضر سعی می شود، اثر تخلخل بر روی هدایت حرارتی ماتریس سوخت  $UO_2$  بطور کمی تعیین گردد. برای دستیابی به این مهم، از مدل تخمین تخلخل اسپینو [۹] و مدل رست [۳ و ۶] برای محاسبه تورم همراه با تبلور مجدد ماتریس سوخت  $UO_2$  استفاده می گردد. سپس به عنوان یک مورد مطالعاتی، رابطه هدایت حرارتی HALDEN [۱۱] برای سوخت  $UO_2$  انتخاب می شود و با یک ضریب تخلخل توسعه یافته از روش تحلیلی به کار رفته در کد DART ترکیب می گردد.

برای انجام محاسبات در این مقاله یک برنامه کامپیوتری تهیه شده است که در آن دستگاه معادلات به کار رفته در مدل تورم سوخت رست [۳] به منظور یافتن تورم سوخت ناشی از حباب های درون دانه ای سوخت با روش عددی رانگ- کوتای مرتبه ۴ حل شده است و برای به دست آوردن سایر جملات سهم در تورم سوخت از مدل های تحلیلی استفاده می شود. مدل تخلخل اسپینو [۹] با تصحیح تخلخل کل [۱۰]، همراه با رابطه هدایت حرارتی HALDEN در این برنامه به کار رفته است.

## ۱. مدل ها و روش ها

### ۱.۱ تورم و تخلخل

یک روش برای محاسبات تحول تورم بر حسب فرسایش برای محدوده با دمای پایین و فرسایش پایین و نیز محدوده با دمای پایین و فرسایش بالا توسط رست در مرجع [۳ و ۹] توسعه داده شده است که در مقاله های قبلی نویسندگان

<sup>1</sup> Dispersion fuel

<sup>2</sup> Fuel bulk

<sup>3</sup> Void



[۱۰ و ۱۲] بطور مبسوط شرح داده شده است. با استفاده از این روش، چگالی اتم و حباب های گاز شکافت درون-دانه‌ها و در مرز دانه تعیین می گردد.

پس از محاسبه تورم ماتریس سوخت که ناشی از گازهای شکافت است نوبت به محاسبه تحول تخلخل با افزایش فرسایش است. تخلخل به صورت حجم خالی بر حجم کل تعریف می شود. حجم کل  $P$  نیز از دو بخش تشکیل می شود که یکی شامل حجم خالی هنگام ساخت<sup>۱</sup> یا همان تخلخل اولیه سوخت  $P_v$  است و دیگری تخلخل تورمی<sup>۲</sup>  $P_s$  است و از تورم ماتریس سوخت که ناشی از حباب های گاز شکافت القا شده از تابش است، نشأت می گیرد. روابط مربوط به  $P_v$  و  $P_s$  در کارهای قبلی نویسندگان این مقاله [۱۰ و ۱۲] ذکر گردیده است اما منحنی های آن به دلیل اهمیت در شکل ۱ نمایش داده شده است. مقادیر مورد نیاز در محاسبات، در جدول ۱ مرجع [۱۲] آورده شده است.

در این شکل تخلخل تورمی  $P_s$ ، تخلخل  $P_v$  و جمع آنها که تخلخل کل  $P$  نامیده می شود، به عنوان تابعی از فرسایش تعیین شده است. مشاهده می شود که در فرسایش های بالا به علت افزایش تجمع حباب های گاز مرز دانه ای در مرز دانه تبلور مجدد شده، تورم حباب گازی مربوطه و در نتیجه تخلخل ناشی از آن یعنی  $P_s$  افزایش می یابد که به افزایش تخلخل کل می انجامد در صورتی که سهم تخلخل ناشی از تخلخل های  $P_v$  با شروع پدیده تبلور مجدد در فرسایش های بالا کاهش یافته و نهایتاً از بین می رود زیرا تخلخل های اولیه در حال پر شدن با گاز شکافت هستند و سهم تخلخل  $P_v$  در حال تبدیل به سهم  $P_s$  است.

### ۱.۲ مدل هدایت حرارتی HALDEN

هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$ ، که از نتایج تجربی HALDEN [۱۳] و با در نظر گرفتن اثر کاهنده فرسایش روی آن به دست آمده است، به صورت معادله (۱) است.

$$k_{95} = \frac{1}{0.1148 + 0.0035Bu + (0.0002474 - 8.24 \times 10^{-7}Bu)(T-273)} + 0.0132 e^{0.00188(T-273)} \quad (1)$$

که در آن  $k_{95}$  هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$  در ۹۵٪ چگالی نظری ( $10/96 \text{ g/cm}^3$ ) بر حسب  $W/mK$ ،  $Bu$  فرسایش بر حسب  $MWd/KgU$  و دما بر حسب کلوین است.

### ۱.۳ ضریب تخلخل

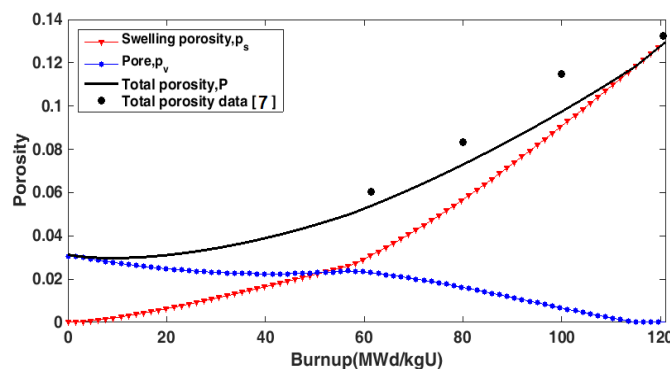
برای در نظر گرفتن اثر تخلخل  $P$  روی هدایت حرارتی سوخت تابش دیده  $UO_2$  که توسط رابطه HALDEN تعریف شده است، فرض می شود که از لحاظ ریخت شناسی، سوخت دارای یک ساختار سه فازی شامل تخلخل های کروی  $P_v$ ، (که دخالتی در تورم ماتریس سوخت ندارد) و تخلخل تورمی  $P_s$  (دخیل در تورم ماتریس) باشد که به طور

<sup>1</sup> As-fabricated voids

<sup>2</sup> Swelling porosity



یکنواخت در ماده سوخت کاملاً چگال متشکل از ماتریس سوخت و محصولات جامد شکافت، پراکنده شده است. در این مقاله یک مدل برای تعیین ضریب تخلخل بر اساس مدل هدایت حرارتی به کار رفته در کد DART مورد استفاده قرار می‌گیرد. در این مدل یک ماده جامد یک تخلخل گازی منفرد را در بر گرفته است و یک سلول واحد از ذره سوخت را تشکیل می‌دهد [۶]. طبق این مدل وقتی که ماده جامد و تخلخل گازی به ترتیب سوخت و تخلخل  $P_v$  در نظر گرفته شوند، آنگاه برای یافتن هدایت حرارتی موثر سلول واحد معادله (۲) را خواهیم داشت.



شکل ۱. شکل گیری تخلخل  $P_v$ ، تخلخل تورمی  $P_s$  و  $P$  برحسب فرسایش در دمای ۸۰۰ K به همراه مقادیر تجربی تخلخل کل [۷] برای مقایسه.

$$\frac{k_e^V}{k_0} = 1 - \left[ \pi \left( \frac{3}{4\pi} P_v \right)^{\frac{2}{3}} \right] \left[ 1 - \frac{k_g}{2k_0 \left( \frac{3}{4\pi} P_v \right)^{\frac{1}{3}}} \right], \quad (2)$$

به طوری که  $k_e^V$  هدایت حرارتی موثر سوخت شامل تخلخل  $P_v$  بر حسب  $W/mK$ ،  $k_0$  هدایت حرارتی سوخت کاملاً چگال  $UO_2$  (معادله (۱) پس از تبدیل از  $k_{g5}$  به  $k_g$ ) و  $k_g$  هدایت حرارتی گاز داخل تخلخل است. به دلیل این که تخلخل  $P_v$  کاملاً خالی است و گازی را شامل نمی‌شود در اینجا  $k_g$  برابر صفر است.

برای سهیم کردن نقش تخلخل تورمی در هدایت حرارتی سوخت یک بار دیگر سلول واحد را در نظر می‌گیریم که این بار ماده جامد شامل سوختی است که تخلخل  $P_v$  را در بر دارد (با هدایت حرارتی  $k_e^V$ ) و تخلخل گازی، تخلخل تورمی  $P_s$  است. در نتیجه ضریب تخلخل معادله (۳) حاصل می‌گردد.

$$\frac{k_{eff}}{k_0} = \left[ 1 - \pi \left( \frac{3}{4\pi} P_v \right)^{\frac{2}{3}} \right] \left\{ 1 - \left[ \pi \left( \frac{3}{4\pi} P_s \right)^{\frac{2}{3}} \right] \left[ 1 - \frac{k_g}{2k_0 \left( \frac{3}{4\pi} P_s \right)^{\frac{1}{3}}} \right] \right\}, \quad (3)$$

که  $k_{eff}$  هدایت حرارتی موثر سوخت شامل تخلخل‌های  $P_v$  و  $P_s$  است. برای تخلخل تورمی  $P_s$ ،  $k_g$  در این مقاله اثر شکل گیری تخلخل با فرسایش روی هدایت حرارتی سوخت با استفاده از معادلات بالا بررسی خواهد شد.

## ۲. نتایج و بحث

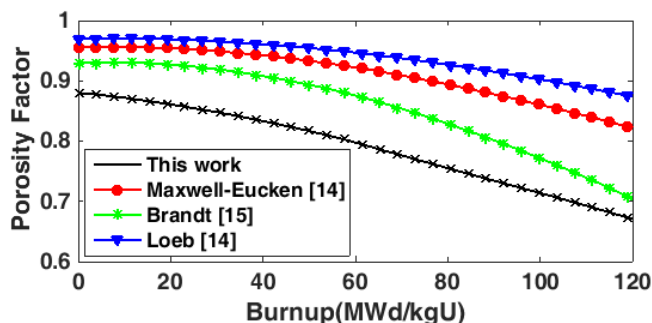
### ۲.۱ ضریب تخلخل



ضریب تخلخل به دست آمده در این مقاله با چند ضریب تخلخل رایج [۱۴ و ۱۵] در شکل ۲ مقایسه شده است. همان طور که مشاهده می‌شود، ضریب تخلخل جدید نسبت به سایر ضرایب محافظه کارانه تر بوده و مقدار کمتری را پیش بینی می‌کند. قطعاً با تاثیر این ضریب تخلخل بر رابطه هدایت حرارتی HALDEN، کاهش بیشتری در هدایت حرارتی نسبت به تاثیر سایر ضرایب ایجاد خواهد شد که باعث می‌شود هدایت حرارتی موثر پیش بینی شده برای سوخت متخلخل مطابق با شکل ۳ (که در بخش بعد ترسیم می‌شود)، به مقادیر تجربی نزدیک تر شود.

## ۲.۲ هدایت حرارتی

شکل ۳ تحول هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$  را با رابطه HALDEN به صورت تابعی از فرسایش برای دو حالت



شکل ۲. مقایسه ضریب تخلخل کار حاضر و چند ضریب تخلخل رایج [۱۴ و ۱۵] بر حسب فرسایش.

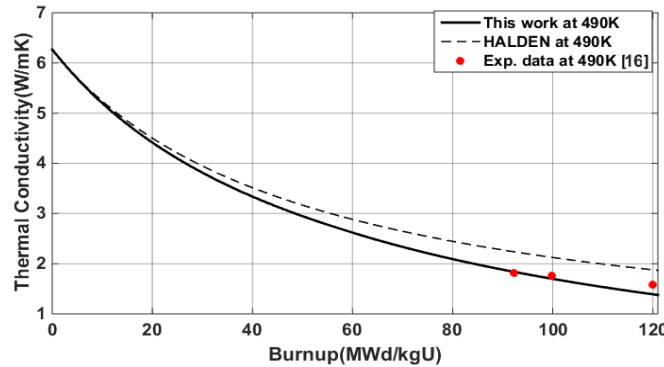
تخلخل حجمی ثابت با مقدار ۵٪ و تخلخل متغیر با فرسایش که با روابط بالا محاسبه گردیده است، مقایسه می‌کند (جدول ۱). همان طوری که مشاهده می‌شود، در نظر گرفتن تحول تخلخل با فرسایش به کاهش هدایت حرارتی تا حدود ۲۵٪، در فرسایش موضعی  $120 \text{ MWd/kgU}$  و دمای  $490 \text{ K}$  منجر می‌شود که سازگاری بهتری با مقادیر تجربی هدایت حرارتی تعیین شده توسط واکر و همکاران [۱۶] را دارد. شکل ۴ هدایت حرارتی محاسبه شده از رابطه HALDEN را با احتساب تحول تخلخل به صورت تابعی از دما برای فرسایش‌های مختلف نشان می‌دهد. کاهش هدایت حرارتی ناشی از فرسایش و دمای بالا بطور واضح در این شکل مشاهده می‌گردد.

شایان ذکر می‌باشد که حساسیت سنجی تورم ماتریس و هدایت حرارتی سوخت نسبت به تغییرات پارامترهای مختلف ذکر شده در جدول ۱ در مقاله قبلی نویسندگان این مقاله [۱۲] انجام شده است.

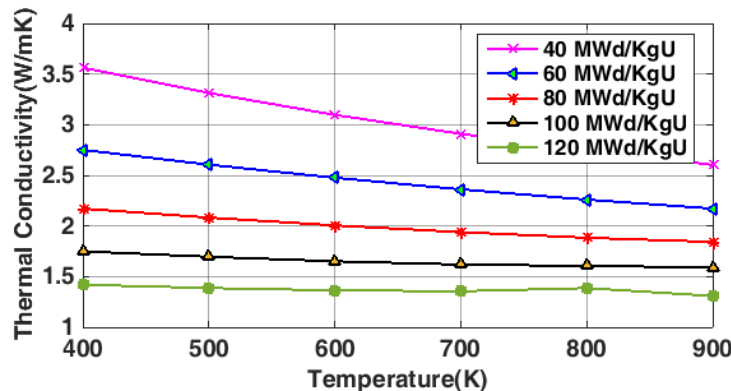
جدول ۱. مقایسه مقادیر هدایت حرارتی بدست آمده از تجربه [۱۶]، رابطه HALDEN (معادله (۱)) و کار حاضر

فرسایش (MWd/kgU)	۹۲/۲	۹۹/۸	۱۲۰
هدایت حرارتی واکر [۱۶] (W/mK)	۱/۸۱	۱/۷۶	۱/۵۸
هدایت حرارتی HALDEN	۲/۲۴	۲/۱۳	۱/۸۸
کار حاضر	۱/۸۳	۱/۷۰	۱/۳۹





شکل ۳. مقایسه هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$  رابطه HALDEN با در نظر گرفتن تحول تخلخل (کار حاضر) با حالت تخلخل ثابت برحسب فرسایش مقادیر تجربی [۱۶] در دمای  $490\text{ K}$  با خطای  $\pm 5\%$ .



شکل ۴. هدایت حرارتی بر حسب دما برای فرسایش‌های مختلف.

### ۳. نتیجه گیری

برای مطالعه اثر محاسبات تحول تخلخل با فرسایش بر هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$  تابش دیده، رابطه تجربی HALDEN انتخاب شده است که با یک ضریب تصحیح پیشنهادی تخلخل ترکیب می‌گردد. این ضریب بر اساس ریخت شناسی سه فاز سوخت تابش دیده که شامل تخلخل‌های سهمی نشده در تورم ماتریس سوخت و تخلخل‌های درشت ناشی از حباب‌های مرزدانه‌ای سهمی در تورم ماتریس سوخت با توزیع یکنواخت در ماده سوخت کاملاً چگال متشکل از ماتریس سوخت  $UO_2$  و محصولات جامد شکافت است، توسعه می‌یابد. با در نظر گرفتن تحول تخلخل با فرسایش، کاهشی در حدود ۲۵٪ در هدایت حرارتی سوخت  $UO_2$  در محدوده فرسایش موضعی  $120\text{ MWd/kgU}$  و دمای  $490\text{ K}$  در مقایسه با حالتی که تخلخل ثابت و برابر با ۵٪ در نظر گرفته شود، تعیین می‌شود. همچنین سازگاری خوبی بین مقادیر تجربی و هدایت حرارتی پیش بینی شده در این مقاله در فرسایش‌های بالا مشاهده می‌گردد.

### مراجع

[1] J. Rest, A model for the effect of the progression of irradiation-induced recrystallization from initiation to completion on swelling of  $UO_2$  and  $U-10Mo$  nuclear fuels, J. Nucl. Mater., 346 (2005) 226–232.



- [2] J. Rest, Derivation of analytical expressions for the network dislocation density, change in lattice parameter, and for the recrystallized grain size in nuclear fuels, J. Nucl. Mater., 349 (2006) 150-159.
- [3] J. Rest, editor: Rudy J. M. Konings, Comp. Nucl. Mater., Vol.3, Elsevier (2012) 579-627.
- [4] A. L. Loeb, Thermal Conductivity: VIII, A theory of thermal conductivity of porous materials, J. Amer. Ceram. Soc, 37 (1954) 96-99.
- [5] H. Kampf, G. Karsten, Effects of different types of void volume on the radial temperature distribution of fuel pins, Nucl. Appl. Technol, 9 (1970) 288-300.
- [6] J. Rest, The DART Dispersion Analysis Research Tool: A Mechanistic Model for Predicting Fission-Product-Induced Swelling of Aluminum Dispersion Fuels, AN L-95/36, (1995).
- [7] J. Spino, A. D. Stalios, H. Santa Cruz, and D. Baron, Stereological evolution of the rim structure in PWR-fuels at prolonged irradiation: Dependencies with burnup and temperature, J. Nucl. Mater., 354 (2006) 66-84.
- [8] M. Owaki N. Ikatsu, K. Ohira, N. Itagaki, Development of a fuel rod thermal-mechanical analysis code for high burn up, IAEA-TECDOC-1233, Session 6 (2000) 375-385.
- [9] J. Spino, J. Rest, W. Goll, C. T. Walker, Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO<sub>2</sub> fuels at high burnup, J. Nucl. Mater., 346 (2005) 131-144.

[۱۰] ب. روستایی، ح. کاظمی نژاد، ص. خاکشورنیا، تحلیل نقش تورم ماتریس سوخت بر تحول تخلخل در سوخت UO<sub>2</sub> تحت تابش درون راکتور، بیست و سومین کنفرانس هسته‌ای، تهران، اسفند ۹۵.

- [11] W. Wiesenack, Assessment of UO<sub>2</sub> conductivity degradation based on in-pile temperature data, Proc. Int. Topi. Mtg. LWR fuel performance, Portland, Oregon, (1997) 507.
- [12] B. Roostaii, H. Kazeminejad, S. Khakshournia, Influence of porosity formation on irradiated UO<sub>2</sub> fuel thermal conductivity at high burnup, J. Nucl. Mater., 479 (2016) 374-381.
- [13] C. Ronchi, M. Sheindlin, D. Staicu, M. Kinoshita, Effect of burn-up on the thermal conductivity of uranium dioxide up to 100.000 MWd/t, J. Nucl. Mater., 327 (2004) 58-76.
- [14] C.B. Lee, J.G. Bang, D.H. Kim, Y.H. Jung, Development of irradiated UO<sub>2</sub> thermal conductivity model, IAEA-TECDOC-1233, (2000) 363-371.
- [15] R. Brandt, J. Neuer, Thermal conductivity and thermal radiation properties of UO<sub>2</sub>, J. Non-Equilib. Thermodyn., 1 (1976) 3-23.
- [16] C.T. Walker, D. Staicu, M. Sheindlin, D. Papaioannou, W. Goll, F. Sontheimer, On the thermal conductivity of UO<sub>2</sub> nuclear fuel at a high burnup of around 100 MWd/kgHM, J. Nucl. Mater., 350 (2006) 19-39.