

## تحلیل نقش تورم ماتریس سوخت بر تحول تخلخل در سوخت $UO_2$ تحت تابش درون راکتور

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

- ۱- سازمان انرژی اتمی- پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای- پژوهشگاه راکتور
- ۲- سازمان انرژی اتمی- پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای- پژوهشگاه کاربرد پرتوها
- ۳- سازمان انرژی اتمی- پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای- پژوهشگاه فیزیک و شتابگرها

### چکیده

بر اساس مدل تورمی دما پایین *Rest* می توان یک رابطه تخلخل کل را برای سوخت  $UO_2$  (و نیز سایر سوخت ها) بصورت دو جمله تخلخل و تخلخل تورمی در *HBS* (ساختار مصرف سوخت بالا) یا اصطلاحاً در ناحیه *rim* توسعه داد. نتایج بدست آمده نشان می دهد برای سوخت  $UO_2$  در ناحیه *rim* سهم غالب تخلخل کل ناشی از تخلخل تولید شده از تهی شدن زمینه سوخت از  $Xe$  می باشد در صورتیکه تخلخل تورمی تقریباً ثابت بوده و سهم کوچکی از تخلخل کل را تشکیل می دهد. در اعتبارسنجی تحول تخلخل با مقادیر تجربی تخلخل، توافق نسبتاً خوبی مشاهده شده است.

کلیدواژه ها: تخلخل، تورم ماتریس سوخت، تخلخل تورمی، ساختار مصرف سوخت بالا، تهی سازی  $Xe$

### ۱. مقدمه

سوخت اکسیدی عموماً توسط تف جوشی<sup>۱</sup> پودر فشرده  $UO_2$  در دمای بالا ساخته می شود. با کنترل شرایط تف جوشی می توان، موادی با چگالی مناسب بطور معمول در حدود ۹۰٪ چگالی اسمی تولید نمود. در نتیجه، این تخلخل اولیه هنگام ساخت<sup>۲</sup> همیشه در سوخت تابش دهی نشده وجود دارد. اتم های گاز ناشی از فرایند شکافت در ماتریس سوخت غیرقابل حل بوده و در حباب های درون دانه ای و مرز دانه ای انباشته می گردد که در تورم سوخت و تولید تخلخل سهم می باشد. با افزایش مصرف سوخت، ماتریس سوخت بخاطر پخش حرارتی و غیرحرارتی  $Xe$  از دانه های سوخت  $UO_2$  به تدریج از  $Xe$  تهی می شود که این منجر به افت تورم ماتریس سوخت می گردد و فضای خالی ناشی از ترک گازها در تولید تخلخل سهم می شود. مراجع [۱ و ۲] آزمایشاتی را که در آن غلظت  $Xe$  اندازه گیری شده است را گزارش می کند و یک

<sup>1</sup> Sintering

<sup>2</sup> As-fabricated porosity

منحنی برای غلظت Xe بر حسب مصرف سوخت موضعی پیشنهاد می دهد که زمان شروع و پایان فرایند مصرف سوخت بالا القا شده از تابش<sup>۳</sup> را در محدوده مصرف سوخت ۶۰ تا ۱۲۰ MWd/KgU تعیین می کند.

درک تحول تخلخل در طی تابش، بخصوص بعد از شروع ساختار مصرف سوخت بالا یا HBS<sup>۴</sup> بعلا اثر گذاری مستقیم تخلخل هم بر روی هدایت حرارتی و هم استحکام مکانیکی، حائز اهمیت بالایی می باشد [۴ و ۳]. بنابراین مطالعه تحول تورم سوخت و رفتار کلی گازهای شکافت امری ضروری بنظر می رسد [۶ و ۵].

Spino و همکارانش [۴] یک رابطه برای تورم کل ماتریس<sup>۵</sup>، مرتبط با چگالی و تخلخل توده سوخت<sup>۶</sup> بدست آورده اند که با محاسبه تورم کل ماتریس بر اساس مدل تورمی دما پایین Rest [۵] و اندازه گیری چگالی توده سوخت، تحول تخلخل در سوخت UO<sub>2</sub> تابش دهی شده بر حسب مصرف سوخت نشان داده شده است. اما نکته ای که باید مورد توجه قرار گیرد این است که جمله تخلخل معرفی شده در کار Spino و همکارانش [۴] در حقیقت تخلخلی (حفره تو خالی)<sup>۷</sup> است که سهمی از تورم ماتریس سوخت ندارد در صورتیکه جمله تورم ماتریس ناشی از حباب های گاز شکافت در تولید تخلخل کل سهم است و می تواند بصورت جمله ای به سهم تخلخل (حفره تو خالی) اضافه گردد. در این مقاله رابطه ای برای تخلخل حجمی کل سوخت تابش دهی شده متشکل از دو بخش تخلخل و تخلخل تورمی ارائه می گردد.

این مقاله در بخش ۲ مدل تخلخل و مدل تورم ماتریس Rest [۵] را مرور می کند و سپس در بخش ۳ نتایج را برای تورم ماتریس و تحول تخلخل ارائه می دهد و نهایتاً در بخش ۴ به نتیجه گیری از این کار می پردازد.

## ۲. مدل ها و روش ها

### ۱،۲ تخلخل

تخلخل بصورت حجم فضای خالی<sup>۸</sup> برحجم کل تعریف می شود (ولی تورم تغییرحجم برحجم اولیه است) [۷]. حجم کل P نیز از دو بخش تشکیل می شود که یکی شامل تخلخل اولیه هنگام ساخت سوخت<sup>۹</sup> P<sub>v</sub> است و دیگری تخلخل تورمی P<sub>s</sub> است و از تورم ماتریس که ناشی از حباب های گاز شکافت القا شده از تابش است، نشأت می گیرد (P = P<sub>s</sub> + P<sub>v</sub>). در واقع ماتریس، حجم سوخت بدون احتساب حجم تخلخل

<sup>3</sup> Irradiation-induced high burn up process

<sup>4</sup> High burnup structure

<sup>5</sup> Total matrix swelling

<sup>6</sup> Fuel bulk

<sup>7</sup> Cavity

<sup>8</sup> void

<sup>9</sup> As-fabricated porosity

است.  $P_V$  و  $P_S$  در معادله ۱ و ۲ تعریف شده است. با در نظر گرفتن حجم سوخت تابش دهی نشده برای حالت مرجع در محاسبات تورم سوخت،  $P_V$  می تواند از معادله ۱ که در مرجع [۴] داده شده بدست آید.

$$P_V = 1 - (1 + \Delta V^{\text{matrix}}/V_0^{\text{matrix}})(\rho/\rho_{\text{th}}), \quad (1)$$

$$P_S = (\Delta V^{\text{gas bubble}}/V_0^{\text{matrix}})/(1 + \Delta V^{\text{gas bubble}}/V_0^{\text{matrix}}), \quad (2)$$

که  $V_0^{\text{matrix}}$  حجم اولیه ماتریس،  $\Delta V^{\text{matrix}}$  افزایش حجم ماتریس ناشی از محصولات جامد ( $\Delta V^{\text{solid}}/V_0^{\text{matrix}}$ ) و گازی ( $\Delta V^{\text{gaseous}}/V_0^{\text{matrix}}$ ) شکافت،  $\rho/\rho_{\text{th}}$  نسبت چگالی واقعی به چگالی اسمی سوخت،  $\Delta V^{\text{gas bubble}}$  افزایش حجم ماتریس ناشی از شکل گیری حباب های گاز شکافت و  $\Delta V^{\text{gas bubble}}/V_0^{\text{matrix}}$  کسر تورمی ماتریس سوخت ناشی از حباب های گاز شکافت می باشد.  $\Delta V^{\text{matrix}}/V_0^{\text{matrix}}$  کسر کلی تورم ماتریس سوخت ناشی از محصولات جامد و گازی بصورت زیر می باشد.

$$\Delta V^{\text{matrix}}/V_0^{\text{matrix}} = \Delta V^{\text{solid}}/V_0^{\text{matrix}} + \Delta V^{\text{gaseous}}/V_0^{\text{matrix}}, \quad (3)$$

که جمله اول مربوط به تورم ناشی از محصولات جامد شکافت است که طبق [۸] ۰/۳۲ درصد به ازای هر ۱۰ MWd/KgU در نظر گرفته می شود و جمله دوم کسر کلی تورم گاز ناشی از اتم های گاز منفرد حل شده در ماتریس سوخت و حباب های گاز شکافت می باشد (معادله ۵).

$$\Delta V^{\text{gaseous}}/V_0^{\text{matrix}} = \Delta V^{\text{gas atom}}/V_0^{\text{matrix}} + \Delta V^{\text{gas bubble}}/V_0^{\text{matrix}} \quad (4)$$

مطالعه تحول تخلخل با استفاده از معادله بالا مستلزم محاسبه جملات مربوط به تورم ماتریس می باشد.

## ۲،۲ تورم ماتریس در مصرف سوخت پایین

یک روش برای کارکرد دما پایین توسط Rest در مرجع [۵] توسعه داده شده است. چگالی گاز در حباب های درون دانه ای<sup>۱۰</sup> همگام با زمان تابش دهی تغییر می کند و می تواند بصورت جمع دو معادله زیر نوشته شود که تحول زمانی چگالی حباب گاز شکافت  $c_b$  و تعداد اتم های گاز  $n_b$  در حباب را نشان می دهد.

$$\frac{dc_b(t)}{dt} = \frac{16\pi f_n D_g r_g c_g(t) c_g(t)}{n_b(t)} - \frac{b}{2} c_b(t) \quad (5)$$

$$\frac{dn_b(t)}{dt} = 4\pi r_b(t) D_g c_g(t) - \frac{b}{2} n_b(t), \quad (6)$$

که  $f_n$  ضریب جوانه زنی حباب،  $b$  نرخ انحلال مجدد درون دانه ای،  $c_g$ ،  $D_g$ ،  $r_g$  و  $r_b$  به ترتیب چگالی، ضریب پنخس، شعاع اتم های گاز درون دانه ای و حباب های گاز درون دانه ای می باشد. اولین جمله سمت

<sup>10</sup> Intragranular

راست معادله ۶ نرخ تولید حباب درون دانه ای با شعاع متوسط  $r_b$  را نشان می دهد. آخرین جمله سمت راست معادلات ۵ و ۶ به ترتیب نرخ از دست رفتن کل حباب و اتم گاز از داخل حباب را بیان می نماید. در این مقاله دستگاه معادلات بالا با روش عددی رانگ-کوتا مرتبه ۴ برای تعیین  $c_b$  و  $n_b$  حل شده است. نهایتاً کسر کلی تورم گاز بصورت زیر بدست می آید [۴].

$$\left(\frac{\Delta V_{\text{gas bubble}}}{V_0^{\text{matrix}}}\right)_g = \frac{c_g a^3}{4} + \frac{4\pi}{3} \left( r_b^3 c_b + \frac{3R_b^2 c_b}{d_g} \right). \quad (7)$$

که  $a$  ثابت شبکه و  $d_g$  اندازه دانه است. جمله اول سمت راست، تورم ناشی از اتم های گاز حل شده درون ماتریس سوخت و جمله دوم، مجموع تورم ناشی از حباب های گاز درون دانه ای و مرزدانه ای است  $\left(\frac{\Delta V_{\text{gas bubble}}}{V_0^{\text{matrix}}}\right)$  که منجر به شکل گیری تخلخل تورمی می گردد. در ضمن برای بدست آوردن  $c_g$ ،  $C_b$  (چگالی حباب روی مرزدانه)،  $C_g$  (چگالی اتم های گاز روی مرزدانه)، و  $r_b$  و  $R_b$  (شعاع حباب گاز درون دانه و مرزدانه ای) می توان مراجع [۶-۴] بکار برد.

### ۲.۳. تورم ماتریس در مصرف سوخت بالا

با افزایش مصرف سوخت، ماتریس سوخت از Xe تهی می گردد. مقدار Xe باقیمانده در ماتریس سوخت با استفاده از تکنیک EPMA<sup>11</sup> تعیین می شود که غلظت Xe را در سوخت اندازه گیری می کند. بعلاوه حضور Kr (علاوه بر Xe) در ماتریس سوخت و نسبت تولید ۱۰/۸ Xe به آن ( $Xe/Kr \approx 10/8$ ) در فرایند شکافت، رابطه تولید Xe،  $C_{Xe}$ ، در مرجع [۱] تغییر می کند و بصورت  $C_{Xe} = 1.595 \times 10^{-2} Bu$  در می آید [۹] (که البته برای راحتی از همان اندیس Xe بجای Xe&Kr در کل مقاله استفاده می شود). همچنین غلظت Xe و Kr در ماتریس سوخت،  $N_{Xe}$ ، با رابطه زیر داده می شود [۱] و کسر Xe و Kr باقیمانده در ماتریس سوخت  $f^{Xe}$ ، از تقسیم  $N_{Xe}$  بر  $C_{Xe}$  بدست می آید.

$$N_{Xe}(Bu) = \dot{c}_{Xe} \left[ \frac{1}{a} + \left( Bu_0 - \frac{1}{a} \right) e^{a(Bu - Bu_0)} \right] \quad Bu \geq Bu_0 \quad (8)$$

که  $Bu$  مصرف سوخت بر حسب  $MWd/KgU$ ،  $Bu_0$  مصرف سوخت آستانه تهی سازی Xe و Kr،  $\dot{c}_{Xe}$  نرخ تولید Xe و Kr و  $a = 0.058 \text{ kg/MWD}$  یک ضریب تصحیح است [۹].

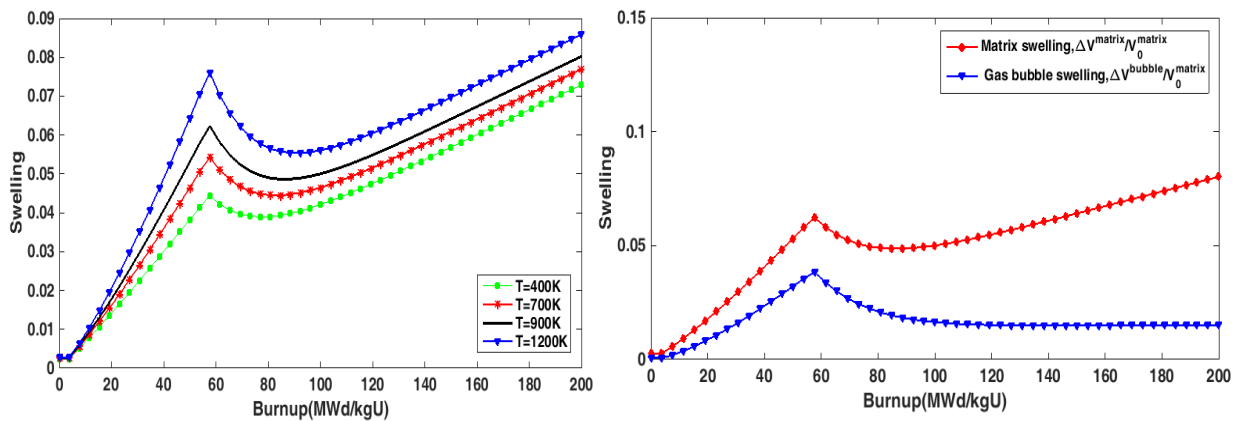
بنابراین برای در نظر گرفتن تهی سازی Xe، باید  $f^{Xe}$  در جمله دوم معادله ۳  $\left(\frac{\Delta V_{\text{gas bubble}}}{V_0^{\text{matrix}}}\right)$  و نیز در  $\frac{\Delta V_{\text{gas bubble}}}{V_0^{\text{matrix}}}$  ضرب شده و در معادلات ۱، ۲ و نهایتاً در تخلخل کل  $(P = P_s + P_v)$  اعمال گردد.

<sup>11</sup> Electron Probe Micro-Analysis

### ۳. بحث و نتایج

#### ۳.۱. تورم ماتریس

مقادیر پارامترهای استفاده شده در محاسبات، از جدول ۱ مرجع [۴] می باشد. شکل ۱، تورم حباب گاز و تورم کل ماتریس را بر حسب مصرف نشان می دهد. مشاهده می شود که تورم حباب گاز بعد از مصرف سوخت آستانه یکمرتبه کاهش می یابد و نهایتاً ثابت باقی می ماند و این در صورتیست که غلظت Xe باقیمانده در ماتریس در مصرف سوخت های بالا به مقدار مجانبی میل می کند، و تورم کلی ماتریس بعد از مصرف سوخت آستانه بعلت تشکیل HBS، کمی کاهش می یابد ولی بعد



بخاطر جبران تهی سازی Xe با محصولات جامد شکافت، با شیب کمتری افزایش می یابد.

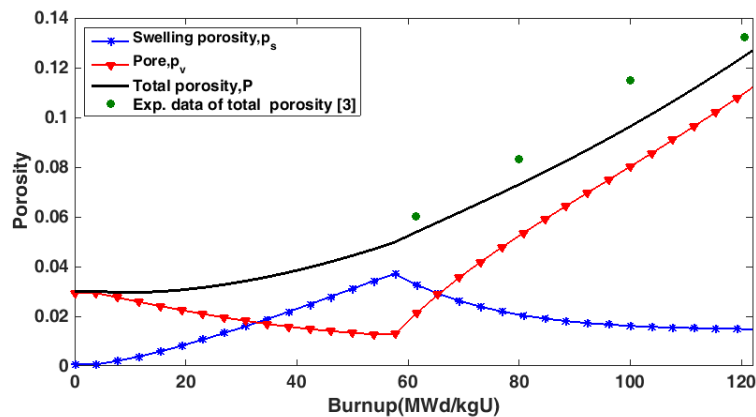
شکل ۱. تورم حباب گاز و تورم کلی ماتریس بر حسب مصرف سوخت در ۹۰۰K. شکل ۲. تغییر تورم کلی ماتریس با مصرف سوخت. شکل ۲ اثر دما بر تورم کلی ماتریس را برای مصرف سوخت های مختلف نشان می دهد. مشاهده می گردد که برای یک مصرف سوخت مورد نظر، تورم ماتریس همانطور که انتظار می رود با دما افزایش می یابد.

#### ۳.۲. تحول تخلخل

با تعیین شدن کسر تورم کلی ماتریس می توان تخلخل  $P_v$  را با استفاده از معادله ۱ و نیز با بکار بردن رابطه تجربی  $\rho/\rho_{th}$  ارائه شده در مرجع [۴] محاسبه نمود.

در شکل ۳، تخلخل  $P_v$ ، تخلخل تورمی  $P_s$  و تورم کل  $P$  بر حسب مصرف سوخت نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می شود در مصرف سوخت های بالا، بعلت تخلخل تولید شده توسط گاز بیرون آمده از دانه ها، سهم تخلخل  $P_v$  از تخلخل کل نسبت به تخلخل تورمی  $P_s$  تا حد زیادی افزایش می یابد. همچنین از مقایسه مقدار تخلخل اندازه گیری شده در آزمایشات مرجع [۳] با تخلخل کل  $P$  و تخلخل  $P_v$

ملاحظه می گردد که  $P$  تطابق مناسبتری نسبت به  $P_v$  با نتایج تجربی دارد (در مرجع [۴]،  $P_v$  تخلخل کل فرض شده است). بعلاوه دریافت شد که دما اثر خیلی کمی روی نتایج نشان داده شده در شکل ۳ دارد.



شکل ۳. تخلخل، تخلخل تورمی، تخلخل کل بر حسب مصرف سوخت و مقایسه بین نتایج تجربی تخلخل کل [۳] و کار حاضر

#### ۴. نتیجه گیری

در این مقاله، یک جمله تخلخل تورمی به رابطه تخلخل داده شده توسط Spino و همکارانش [۴] اضافه شده است. این تخلخل تورمی از شراکت تورم ماتریس سوخت (ناشی از حباب های درون دانه ای و مرزدانه ای گاز شکافت) در تولید تخلخل کل حاصل می شود. تحلیل تحول تخلخل بر حسب مصرف سوخت، نشان می دهد که در مصرف سوخت پایین و قبل از شروع پدیده های مصرف سوخت بالا، سهم عمده تخلخل به تخلخل تورمی مربوط می شود. اگرچه در مصرف سوخت های بالا، تهی سازی  $Xe$  در ماتریس باعث می شود که سهم تخلخل تورمی  $P_s$  از تولید تخلخل کل بخاطر کاهش تورم ماتریس محو شود در حالیکه در همان زمان سهم تخلخل  $P_v$  در تولید تخلخل کل بخاطر تهی سازی  $Xe$  در ماتریس سوخت، افزایش می یابد. در مقایسه مدل تخلخل این مقاله با نتایج تجربی [۳] توافق خوبی مشاهده گردید. نتایج بدست آمده از این تحقیق می تواند همچنین برای بهبود پیش بینی هدایت حرارتی سوخت تابش دهی شده تحت مصرف سوخت های بالا مورد استفاده قرار گیرد.

#### مراجع

- [1] K. Lassmann, C.T. Walker, J. van de Laar, F. Lindstrom, Modeling the high burn up structure in LWR fuel, J. Nucl. Mater, 226, 1-8, 1995.
- [2] C.T. Walker, Assessment of the radial extent and completion of recrystallisation in high burn-up UO<sub>2</sub> nuclear fuel by EPMA, J. Nucl. Mater, 275, 56-62, 1999.
- [3] 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, 66-84, 2006.

- [4] J. Spino, J. Rest, W. Goll, C. T. Walker, Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO<sub>2</sub> fuels at high burn-up, J. Nucl. Mater, 346, 131-144, 2005.
- [5] J. Rest, G. Kagana, A Physical description of fission product behavior in fuels for advanced power reactors, ANL-07/24, Argonne National Laboratory, pp. 21-26, 2007.
- [6] R. J. M. Konings, Comprehensive Nuclear Materials, vol.3, T.R. Allen (Ed.), Elsevier, pp. 582-593, 2012.
- [7] 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, pp. 40-43, 1995.
- [8] D.R. Olander, Fundamental aspects of nuclear fuel elements, Technical Information Center & Energy Research and Development Administration (publisher), USA, pp. 193-194, 1976.
- [9] Martín Lemes, Alejandro Soba, Alicia Denis, An empirical formulation to describe the evolution of the high burnup structure, J. Nucl. Engin. Tech, 456, 174-181, 2015.