



Sci. and Tech. note
یادداشت علمی و فنی

مطالعه‌ی عوامل مؤثر در افزایش عمر و بازدهی تولید انرژی قرص سوخت هسته‌ای UO_2

رفیح علی رحیمی^{۱*}، مژگان ابروانی^۱، محمد محمدیفر^۱، مرضیه فرهمند^۲

۱. پژوهشکده‌ی مواد، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۵۸۹-۸۱۴۶۵، اصفهان - ایران

۲. شرکت سوخت رآکتورهای هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۵۸۹-۸۱۴۶۵، اصفهان - ایران

چکیده: هنگامی که قرص سوخت هسته‌ای درون غلاف و رآکتور قرار می‌گیرد، برخی از اتم‌های اورانیم شروع به شکافت هسته‌ای می‌کنند. در نتیجه تعداد اتم‌های حاصل بیش‌تر از اتم‌های شکافته شده می‌شود. محصولات جامد تولید شده مشکل زیادی ایجاد نمی‌کنند، اما محصولات گازی ضمن تورم قرص به فضای خالی بین قرص - غلاف نیز منتقل می‌شوند. این رفتار موجب تخریب غلاف و کاهش ایمنی رآکتور می‌شود. بنابراین بهتر است قبل از شروع واقعه، غلاف را از رآکتور بیرون آورد. برای بازدهی مناسب تلاش می‌کنند مدت زمان استفاده از قرص را افزایش داده و حداکثر انرژی را از قرص بگیرند. به همین منظور، مشکلات و موانع آن را شناسایی کرده و با انجام اصلاحاتی، کارایی قرص سوخت هسته‌ای را افزایش داده‌اند. این پژوهش، مروری بر فعالیت‌های انجام شده در دنیا در زمینه‌ی شناخت مشکلات و موانع و راه کارهای ارائه شده برای اصلاح رفتار قرص سوخت هسته‌ای است. نتایج این بررسی نشان می‌دهد که از مهم‌ترین ویژگی‌های مؤثر در افزایش عمر و بازدهی تولید انرژی قرص سوخت هسته‌ای، بزرگی اندازه‌ی دانه همراه با تخلخل‌های بین دانه‌ای با اندازه‌ی کنترل شده و خواص خزشی و هدایت حرارتی مناسب آن‌ها هستند.

کلیدواژه‌ها: قرص سوخت هسته‌ای، بازده، دانه‌ی بزرگ

Study on the Effective Parameters for Increasing the Life Time and Efficiency of UO_2 Fuel Pellets

R.A. Rahimi^{1*}, M. Iravani¹, M. Mohammadifar¹, M. Farahmand²

1. Materials Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O.Box: 81465-1589, Esfahan - Iran

2. Nuclear Reactor Fuel Manufacturing Company, AEOL, P.O.Box: 81465-1589, Esfahan - Iran

Abstract: Nuclear fission of uranium atoms starts when a nuclear pellet is placed into the rod and then inside the nuclear reactor. Thus, the number of the produced atoms would be more than those of fission uranium atoms. No problem exists with solid products, but the gas products following the swelling of the pellets enter the gap between the pellet and rod. This causes destruction of the rod and the reactor safety reduction. It is better to exit the rod from the reactor before the event. Attempts are made to increase the life time and the generated energy with nuclear pellets to achieve higher efficiency. For this purpose, after the identification of the obstacles, the efficiency of the nuclear fuel pellets is increased by some modifications. This work is a review of the world activities to identify the obstacles and solutions provided for modifying the nuclear fuel pellets. The results demonstrate that the most important features of a nuclear fuel influence on the life time and efficiency of UO_2 fuel pellets are the largeness of grains along with intergranular porosities with controlled size, good creep and thermal conductivity properties.

Keywords: Fuel pellet, Efficiency, Largeness of grains

*email: rrahimi@aeoi.org.ir

تاریخ دریافت مقاله: ۹۴/۵/۲۶ تاریخ پذیرش مقاله: ۹۵/۱/۲۴



۱. مقدمه

به حاشیه‌ی امن مناسب، لازم است موانعی که انعطاف‌پذیری کلی رآکتور در حال کار را محدود می‌کنند، شناسایی شوند. اگر اندازه‌ی دانه‌های قرص بزرگ و تخلخل‌های بزرگی نیز در درون قرص ایجاد شده باشند، مقدار بیش‌تری از گاز می‌تواند در درون قرص به دام افتد. در این شرایط از تورم قرص، آزاد شدن گاز و افزایش فشار در فضای بین غلاف- قرص جلوگیری می‌شود. این عمل علاوه بر بهبود بازدهی تولید انرژی، در زمان نقل و انتقالات و نگهداری موقت، یکپارچگی مجتمع‌های سوخت استفاده شده را نیز حفظ می‌کند [۷-۱۳].

تولید انرژی زیاد و استفاده‌ی طولانی مدت از قرص سوخت هسته‌ای به خاطر مسائل اقتصادی اهمیت زیادی دارد. مهم‌ترین عاملی که استفاده‌ی طولانی مدت از قرص را محدود می‌کند، آسیب دیدن غلاف در اثر تورم قرص و خروج محصولات شکافت از قرص است. در داخل کشور امکان آزمایش عملی روی قرص سوخت با هدف بررسی عوامل مؤثر در افزایش بازدهی تولید انرژی آن وجود ندارد. این پژوهش مروری بر منابع علمی و با هدف ارائه‌ی اطلاعاتی برای شناخت عوامل مؤثر در افزایش بازدهی تولید انرژی قرص انجام شده است. در این راستا پدیده‌هایی مانند تشکیل ساختار ریزدانه و نقش آن در انتقال حرارت قرص و نگهداری گازهای حاصل از شکافت، راه‌های افزایش توانایی نگهداری گاز توسط قرص بدون ایجاد تورم، چگونگی اصلاح رفتار خزشی^(۱) قرص و کنش بین غلاف- قرص و عوامل مؤثر در انتقال حرارت قرص که در میزان انرژی تولیدی و طول عمر قرص سوخت در رآکتور بسیار تأثیر دارند، مطالعه شده‌اند.

۲. تئوری

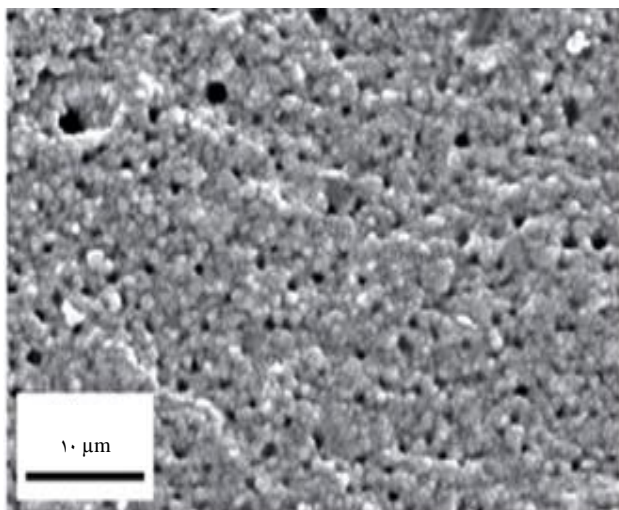
۲.۱ تشکیل ساختار ریزدانه

نتایج پژوهش‌های زیادی نشان می‌دهند که پویس آزاد میانگین نوترون‌های حرارتی و فوق‌حرارتی در سوخت UO_2 در مقایسه با قطر سوخت کوتاه است. چون بیش‌تر آن‌ها از بیرون قرص می‌آیند، تعداد زیادی از آن‌ها در نواحی حاشیه‌ای قرص جذب می‌شوند. جذب نوترون‌ها در آن نواحی توسط ^{238}U ، باعث بالا

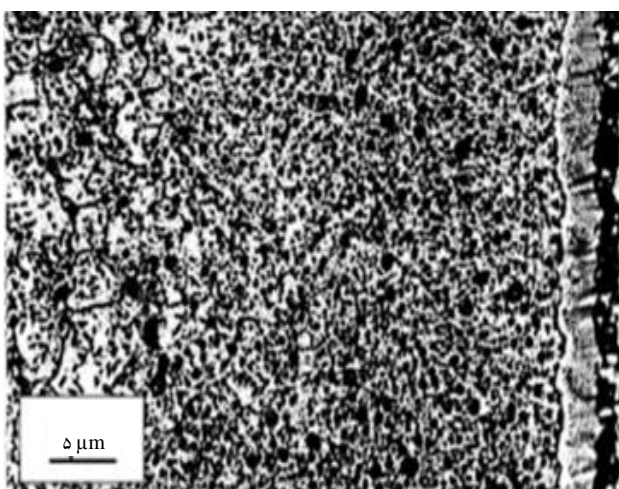
با شروع شکافت هسته‌ای در قرص سوخت هسته‌ای و گذشت زمان، مقدار مواد قرص به آهستگی تغییر می‌کند. تغییر پارامترهای هسته‌ای، حرارتی، مکانیکی و شیمیایی ناشی از شکافت هسته‌ای، ساختار قرص را تغییر داده و رفتار آن را کنترل می‌کنند. بهینه نمودن هزینه‌ها و افزایش بازدهی تولید انرژی از یک کیلوگرم سوخت هسته‌ای همواره در رآکتورهای هسته‌ای مورد توجه بوده است. افزایش انرژی تولیدی، باعث افزایش محصولات شکافت هسته‌ای خواهد شد. در این صورت محصولات شکافت (جامد، فرار و گازی) به صورت محلول، رسوب و تخلخل‌های گازی در شبکه‌ی سوخت انباشته می‌شوند. این فرایند باعث تغییر در ترکیب و ویژگی‌های فیزیکی قرص و رفتار حرارتی و مکانیکی سوخت- غلاف می‌شوند که سرانجام اثر خود را به صورت کاهش بازدهی تولید انرژی قرص و ایمنی رآکتور بر جای می‌گذارند [۱-۴].

گازهای زنون و کریپتون از اصلی‌ترین محصولات شکافت هسته‌ای هستند که بیش‌ترین مشکل را ایجاد می‌کنند. این گازها ابتدا در درون قرص حل شده ولی پس از مدتی با افزایش غلظت آن‌ها و رسیدن به حالت فوق اشباع، در اثر گرما و تابش، درون دانه نفوذ کرده و تخلخل‌هایی را جوانه‌زنی و رشد می‌دهند. به دلیل تولید پیوسته‌ی محصولات گازی، تخلخل‌ها بزرگ شده به هم متصل و تخلخل‌های کانالی را تشکیل می‌دهند. سرانجام محتویات گازی آن‌ها شروع به آزاد شدن به درون فضای بین غلاف و قرص می‌کنند. پر شدن فضای بین غلاف و قرص توسط این گازها موجب کاهش انتقال حرارت این فضا و افزایش دمای قرص می‌شود که اثر بسیار نامطلوبی روی خواص آن می‌گذارد [۱، ۵، ۶].

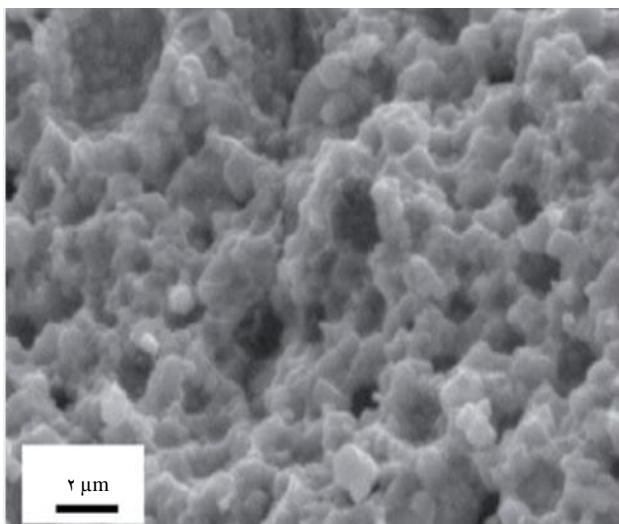
قرص سوخت هسته‌ای پرتو دیده باید بتواند در شرایط عملکرد عادی و سانحه، بدون شکستگی در اثر کنش مکانیکی بین قرص و غلاف، به کار خود ادامه دهد. با انتخاب ریزساختارهایی با قابلیت بالای تغییر شکل پلاستیک و نگهداری گاز توسط قرص، مشکل شکستگی در اثر کنش مکانیکی بهبود می‌یابد. برای عملکرد رضایت‌بخش و دستیابی



(الف)



(ب)



(ج)

شکل ۱. تصویرهای میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) از سطح مقطع سوخت با ساختار ریزدانه در ناحیه‌ی حاشیه‌ای با بازده‌های تولید انرژی؛ (الف) ۷۵ GWd/tU، (ب) ۶۵ GWd/tU، و در قسمت انتهایی سمت راست ناحیه‌ی مرزی بین سوخت و غلاف با بازده‌ی تولید انرژی، (ج) ۱۶۰ GWd/tU [۲۲].

رفتن غنای موضعی هسته‌های شکافت‌پذیر ^{239}Pu در زمان بالا رفتن بازده‌ی تولید انرژی خواهد شد. در نتیجه مؤلفه‌ی شعاعی بازده‌ی تولید انرژی در مرکز قرص کاهش می‌یابد، ولی در ناحیه‌ی حاشیه‌ای بیش‌ترین مقدار را خواهد داشت. در چنین شرایطی در قرص سوخت با بازده‌ی تولید انرژی بیش‌تر از $60 \text{ GWd/tU}^{(۲)}$ ، چگالی توان تولیدی در پیرامون قرص ۲٫۷ و مقدار موضعی آن ۲٫۴ برابر میانگین می‌شود.

عمده تغییرات ریزساختاری در ناحیه‌ی حاشیه‌ای، تشکیل و گسترش ساختار ریزدانه است. پژوهش‌ها نشان می‌دهند که ساختار قرص سوخت در بازده‌ی تولید انرژی حدود 50 GWd/tU و دمای کمتر از 1100°C ، به ساختار ریزدانه‌هایی به قطر کم‌تر از یک میکرومتر و درصد بالایی از تخلخل وابسته است [۱۴-۲۰].

تشکیل این ساختار از ضرورت‌های انجام پدیده‌ی شکافت هسته‌ای در قرص است. اگر تخلخل اولیه‌ای ایجاد نشود قرص متورم خواهد شد. در غیر این صورت ابتدا تخلخل‌های به وجود آمده به خاطر انرژی زیاد حاصل از شکافت هسته‌ای در درون قرص، تجزیه شده و به صورت یکنواخت در شبکه حل می‌شود. سپس به دلیل غلظت فوق اشباع حل شدن محصولات گازی و جامد که از شکافت هسته‌ای در درون دانه‌های قرص و بالا بودن ضریب نفوذ اتم‌های گازی و جامد در این دما به دست می‌آید، جوانه‌زنی غیریکنواخت تخلخل‌ها و دانه‌های جامد روی نابه‌جایی‌ها، ناخالصی‌ها و نواحی معیوب شبکه‌ای ایجاد شده به وسیله‌ی آسیب‌های تابش‌دهی انجام می‌گیرد. بالا بودن تعداد نابه‌جایی‌ها در درون دانه‌ها و تنش‌های مکانیکی درونی بالای ناشی از تجمع اتم‌های گازی و جامد و حرکات تابش، موجب تنظیم دوباره‌ی نابه‌جایی‌ها و تجزیه‌ی دانه‌های بزرگ به دانه‌های کوچک‌تر و تشکیل ساختار ریزدانه می‌شود (شکل ۱). اتم‌های گازی حاصل از شکافت نیز درون انبوهی از مکان‌های خالی اتمی که در نتیجه‌ی شکافت هسته‌ای به وجود آمده‌اند جای می‌گیرند و افزایش فشار آن‌ها باعث تشکیل و جوانه‌زنی تخلخل‌های کوچک می‌شوند. تشکیل این ساختار در نتیجه‌ی جوانه‌زنی ذرات جامد جدید و رشد تخلخل‌های میکرومتری در ساختار آن ذرات در اثر گردآوری گازهای پیرامونی، بازده‌ی تولید انرژی را افزایش می‌دهد [۱۷-۲۲].



۲.۲ افزایش قابلیت نگهداری محصولات گازی توسط قرص و

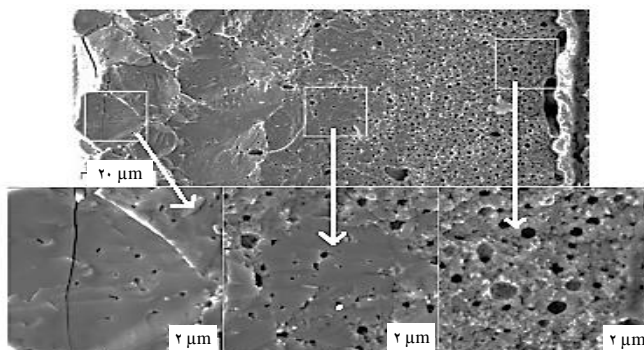
اصلاح رفتار مکانیکی غلاف - قرص

پژوهش‌های گسترده نشان می‌دهند که در رآکتورهای آب سبک، با افزایش یا کاهش شیب‌دار توان خروجی رآکتور^(۳) احتمال شکست غلاف بالا می‌رود. از این رو حساسیت بیش‌تری برای انباشت محصولات فرار شکافت هسته‌ای در سطح مشترک غلاف / سوخت وجود دارد. هدف اصلی از کاهش آزادسازی محصولات گازی و فرار از قرص سوخت هسته‌ای UO_2 ، فشار ناشی از محصولات آن‌ها درون غلاف است که عاملی مهم در تغییر شکل و شکست احتمالی غلاف طی حادثه‌ی افت فشار بیرونی به شمار می‌آید. هم‌چنین هنگامی که قرص با غلاف در تماس قرار می‌گیرد، در اثر تورم ناشی از تجمع محصولات شکافت، به غلاف تنش مکانیکی وارد می‌شود؛ به طوری که مقادیر بیش‌تر این تنش موجب شکست غلاف خواهد شد [۸، ۹، ۱۷، ۳۰، ۳۱].

افزایش حجم فضای آزاد درون غلاف، کاهش دمای مرکزی سوخت و استفاده از قرص با توان‌مندی نگهداری گاز از عواملی هستند که می‌توانند از ایجاد تنش روی غلاف جلوگیری کنند. هم‌چنین کنش مکانیکی قرص - غلاف، اکسایش یا هیدراسیون آلیاژ زیرکونیمی^(۴) غلاف، افزایش فشار درونی غلاف، ترک‌دار شدن ناشی از خوردگی شیمیایی تحت تنش، انبساط آلیاژ زیرکونیمی در اثر پرتو و تورم سوخت از عوامل مخرب تأثیرگذار روی غلاف هستند. عوامل بالا در بازدهی تولید انرژی قرص بسیار مؤثر هستند، بنابراین روش‌های اصلاحی برای هر کدام به طور جداگانه ارائه می‌شوند:

۱. کاهش دمای درونی قرص که می‌تواند با کاهش قطر قرص‌ها، استفاده از قرص‌هایی با حفره و کانال در مرکزشان و یا استفاده از ورقه‌های گرافیتی بین قرص‌ها اصلاح شود.
۲. افزایش فشار درونی غلاف که برای جبران آن از قرص‌هایی با اندازه‌ی دانه‌ی بزرگ و دارای تخلخل‌های بسته با اندازه‌ی کنترل شده استفاده می‌کنند.
۳. ترک‌دار شدن غلاف زیرکونیمی در اثر خوردگی شیمیایی که برای جلوگیری از آن از پوشش زیرکونیم خالص روی آلیاژ زیرکونیمی استفاده می‌کنند.
۴. اکسایش و هیدراسیون ورقه‌ی غلاف از جنس زیرکونیم که برای جبران آن از آلیاژ زیرکونیم-۴ با ریزساختار جدید و

با وجود گزارش‌های بسیاری که منتشر شده است، هنوز پرسش‌های فراوانی درباره‌ی سازوکارهای تشکیل ساختار ریزدانه رفتار آزادسازی گاز از آن مطرح است. پژوهش‌ها نشان داده‌اند که بیش‌تر محصولات گازی در این ساختار محبوس می‌شوند. کاهش قابل ملاحظه در تولید تخلخل‌های درون دانه‌ای در این ناحیه باعث تثبیت تعداد آن‌ها در مرحله‌ی بعدی پرتوگیری و افزایش قابل ملاحظه در اندازه‌ی تخلخل می‌شود [۱]. با تشکیل این ریزساختار، تورم ناشی از خروج گازها از شبکه‌ی سوخت کاهش می‌یابد. در نواحی مرکزی و میانی، گاز در درون دانه‌ها حل ولی در نواحی حاشیه‌ای، گاز ناشی از محصولات شکافت در درون تخلخل‌های ساختار ریزدانه آزاد می‌شود [۲۳-۲۷]. تشکیل ساختار متخلخل در بخش بیرونی قرص موجب کاهش انتقال حرارت و افزایش دمای سوخت در ناحیه‌ی مرکزی به بالاتر از $1100^{\circ}C$ می‌شود [۲۸]. بالا رفتن دما باعث افزایش تغییر شکل پلاستیک دانه‌ها در ناحیه‌ی مرکزی می‌شود. هم‌چنین پایین بودن بازدهی تولید انرژی در این ناحیه موجب کاهش میزان تولید گازهای حاصل از شکافت هسته‌ای و کاهش غلظت گازهای محلول در درون دانه‌ها و در نتیجه کاهش تعداد تخلخل‌های تشکیل شده در این ناحیه می‌شود. اگر سرعت شکافت هسته‌ای در این ناحیه افزایش یابد و باعث بالا رفتن تعداد این تخلخل‌ها نیز شود، چون میزان تغییر شکل پلاستیک زیاد است، تخلخل‌ها تمایل دارند با یک‌دیگر ادغام شوند. بنابراین چنین ساختاری هیچ‌گاه در ناحیه‌ی مرکزی تشکیل نمی‌شود. شکل ۲ انتقال ناحیه با بازدهی تولید انرژی پایین با ساختار دست نخورده را به ساختار ریزدانه و متخلخل در فاصله‌های چند میکرومتری نشان می‌دهد [۱۷-۲۹].



شکل ۲. تصویر میکروسکوپ الکترونی روشی (SEM) از ناحیه‌ی حاشیه‌ای قرص سوخت با بازدهی تولید انرژی 73 GWd/tU سه ناحیه‌ی بزرگ شده‌ی مختلف در تصویرهای زیرین آن‌ها نیز نشان داده شده‌اند [۱۷].



پژوهش‌های دیگری در همین زمینه نشان می‌دهند که از سوخت فوق استوکیومتری UO_{2+x} با اندازه‌ی دانه‌ی کوچک نسبت به سوخت استوکیومتری UO_2 با اندازه‌ی دانه‌ی درشت، به مقدار یکسانی گاز آزاد می‌شود. سوخت‌های UO_{2+x} با اندازه‌ی دانه‌ی درشت و سوخت‌های حاوی Cr_2O_3 (به ویژه آن‌هایی که بیش از ۰٫۲٪ وزنی دارند) به طور قابل ملاحظه‌ای نگره‌داری گاز در درون شبکه‌ی سوخت و تخلخل‌های درون دانه‌ی را افزایش می‌دهند [۱۸].

در مطالعه‌ی دیگری روی نمونه‌های حاوی افزودنی اکسید کروم، غلاف پس از دو مرحله تابش دهی، تحت آزمایش‌های شناسایی غیرمخرب قرار گرفت. بازرسی چشمی، آزمایش‌های جریان الکتریکی گردابی^(۵) و آزمایش‌هایی که برای شناسایی سوراخ روی غلاف انجام شد، نشان دادند که هیچ‌گونه نقصی در غلاف وجود ندارد و رهایی گازهای حاصل از شکافت هسته‌ای از میله‌های سوخت کم و ناچیز است [۱۸]. این رفتار ثابت می‌کند که قابلیت نگره‌داری گازهای حاصل از شکافت دانه‌های سوخت UO_2 حاوی اکسید کروم افزایش و مقدار گازهای انباشته شده در مرزهای بین دانه‌ای که دارای بیش‌ترین شانس خروج از قرص هستند، کاهش یافته است. بهترین نتیجه برای نگره‌داری گاز از سوخت‌های حاوی اکسید کروم با دانه‌های بزرگ‌تر $50 \mu m$ به دست آمد. اصلاح در رفتار نگره‌داری گاز نه تنها در نتیجه‌ی بزرگ شدن اندازه‌ی ذرات بلکه در نتیجه‌ی رسوب افزودنی‌ها در درون دانه‌های قرص سوخت هسته‌ای انجام شده است [۳۴]. آزمایش‌های مخرب نشان دادند که حباب‌های گازی درون دانه‌ای، به ذرات اکسید کرومی چسبیده‌اند که به صورت نامحلول در درون ذرات و در اندازه‌های میکرو یا نانومتری حین سرد شدن رسوب کرده‌اند. همین نتایج، در آزمایش‌هایی با میزان تولید انرژی 65 GWd/tU نیز تأیید شد [۳۵، ۳۶، ۳۷]. آزمایش‌های طیف‌سنجی گاما پس از افزایش پالسی توان تولیدی روی نمونه‌های حاوی اکسید کروم، مهاجرت چشمگیری از پاره‌های شکافت مثل سزیم و ید را به سطوح بین قرصی در نتیجه‌ی ایجاد دمای بالا در این مرحله نشان می‌دهد. با این وجود محصولات خورنده‌ی ناشی از شکافت هسته‌ای هیچ‌گونه شکستی را در غلاف ایجاد نمی‌کنند [۳۸، ۳۹، ۴۰، ۴۱].

در زمینه‌ی افزایش قابلیت نگره‌داری گازهای حاصل از شکافت و جلوگیری از تورم قرص، اثر افزودنی منیزیم نیز

هم‌چنین از آلیاژهای زیرکونیم دارای یک درصد نیوبیم، یک درصد قلع و ۰٫۱ درصد آهن استفاده می‌کنند [۳۰، ۳۱، ۳۲]. به عنوان مثال برای درک چگونگی رفتار قرص-غلاف، با تغییر فاصله‌ی فضای خالی بین آن دو، تغییرات دمای مرکزی قرص و میزان تنش و کرنش روی غلاف در فاصله‌های مختلف فضای خالی مطالعه شده است. تغییرات در فاصله‌های بالا در اثر تغییر در قطر قرص ایجاد شده و هیچ‌گونه تغییری روی غلاف انجام نشده است. جدول ۱ نتایج این بررسی را نشان می‌دهد. نتایج نشان داده‌اند با افزایش فاصله از ۳۰ تا $100 \mu m$ ، دمای مرکزی قرص ثابت ولی تنش و کرنش کاهش می‌یابد و با افزایش بیش‌تر فاصله، به آرامی و در فواصل ۱۵۰ تا $160 \mu m$ به شدت افزایش می‌یابد. بنابراین بهتر است که محدوده‌ی فاصله‌ی فضای بین قرص-غلاف از ۳۰ تا $100 \mu m$ انتخاب شود، ولی اگر بیش‌تر باشد شرایط نامطلوبی ایجاد می‌شود [۵].

تأثیر نسبت O/U بر نفوذ گازهای تولید شده از شکافت هسته‌ای به طور گسترده بررسی شده است. سرعت نفوذ کاتیون در حالت فوق استوکیومتری UO_{2+x} سریع‌تر از حالت استوکیومتری UO_2 است. رهایی زنون نیز باید به طور پیوسته با افزایش x در UO_{2+x} افزایش می‌یافت، اما مشاهده شد که ضریب نفوذ زنون مستقل از ترکیب ناحیه‌ی فوق استوکیومتری است. منحنی‌های آزاد شدن زنون پرتوزا از UO_2 با افزودن ۰٫۱ درصد مولی La_2O_3 ، Y_2O_3 ، Nb_2O_5 بررسی شده است. نتایج نشان می‌دهند که افزودنی‌ها تأثیری در آزادی زنون در نمونه‌ها ندارد، بلکه به مقدار زیادی نفوذ اورانیم را افزایش می‌دهند. هم‌چنین مشخص شد که زنون در جاهای خالی تکی اورانیم یا اکسیژن نفوذ نمی‌کند بلکه به روش نقص شاتکی سه گانه، یعنی سه جای خالی خنثی شامل یک اتم اورانیم و دو اتم اکسیژن، در UO_2 نفوذ می‌کند [۳۳].

جدول ۱. اثر فاصله‌ی فضای خالی بین قرص و غلاف روی تغییرات دمایی قرص، تنش و کرنش غلاف [۵]

فاصله‌ی فضای خالی (میکرومتر)	۳۰	۶۰	۹۰	۱۰۰	۱۲۰	۱۵۰	۱۶۰
دمای مرکزی سوخت (کلوین)	۱۳۵۰	۱۳۵۰	۱۳۵۰	۱۳۵۰	۱۴۰۰	۱۶۳۰	۲۳۵۰
میزان تنش روی غلاف (مگا پاسکال)	۸۰	۷۵	۵۰	۵۰	۴۰	۵۰	۳۵۰
درصد کرنش غلاف	۰٫۰۱۳	۰٫۰۱۱	۰٫۰۰۵	۰٫۰۰۵	-۰٫۰۰۵	۰٫۰۰۶	۰٫۰۱۵



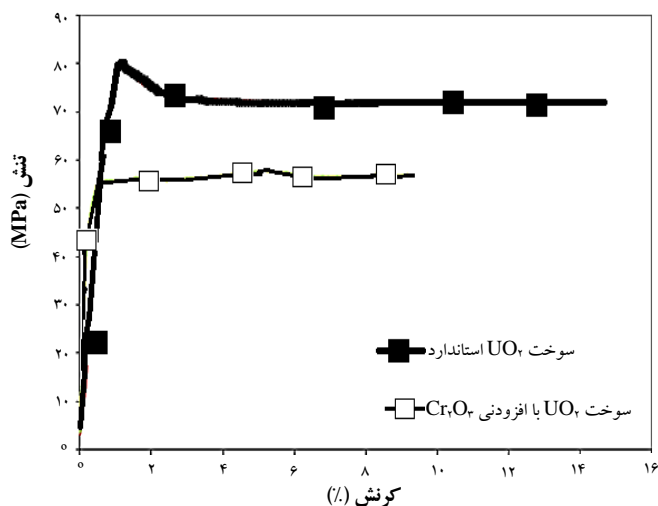
با استفاده از قرص‌های با اندازه‌ی دانه‌ی بزرگ حاصل می‌شوند. زیرا انتظار می‌رود در دمای بالا، با افزایش اندازه‌ی دانه، موم‌سانی^(۶) قرص نیز افزایش یابد. بنابراین پیشرفت‌های اخیر در زمینه‌ی قرص‌های سوخت هسته‌ای روی افزایش اندازه‌ی دانه متمرکز شده است. عوامل گوناگونی برای افزایش اندازه‌ی دانه در سینترینگ^(۷) وجود دارند. از جمله‌ی آن‌ها استفاده‌ی گسترده از افزودنی‌هایی است که می‌تواند اندازه‌ی دانه را به طور چشمگیری افزایش دهد. قرص‌های حاوی کروم یک کاندیدای امیدوارکننده برای حل مسئله‌ی کنش مکانیکی قرص - غلاف هستند. پژوهش‌ها نشان داده‌اند که اندازه‌ی دانه و نرمی قرص‌ها با استفاده از افزودنی کروم یا ترکیبات کروم‌دار به مقدار خیلی زیادی افزایش می‌یابد [۳۵-۳۷، ۴۴-۴۹].

رفتار خزشی سوخت پیچیده است و به نسبت اکسیژن به فلز، مشخصه‌های ریزساختاری مثل اندازه و شکل ذره، تخلخل و متغیرهای حالتی مثل دما، اندازه‌ی تنش و حالت پرتوگیری بستگی دارد. سازوکارهای مختلفی برای کنترل خزش قرص در دماهای بالا (۱۱۰۰ تا ۲۰۰۰°C) پیشنهاد شده‌اند [۴۱]. به طور خلاصه می‌توان سازوکارهای خزش را به کنترل رخنه‌ی شبکه‌ای نابارو - هرینگ^(۸)، رخنه‌ی مرزدانه‌ای کوبل^(۹) و خزش القایی توسط نابه‌جایی‌ها نسبت داد. خزش نابارو - هرینگ، انتقال جای خالی درون دانه با سرعت کنترل شده توسط نفوذ اتم‌های اورانیم است، در حالی که خزش کوبل، نفوذ مرزدانه‌ای را شرح می‌دهد. سرعت کرنش در هر دو سازوکار با تنش اعمالی به طور خطی تغییر می‌کند. خزش نابه‌جایی، بالا رفتن یا لغزش نابه‌جایی است که با تعداد نابه‌جایی در واحد حجم کنترل می‌شود. نظریه‌ی جدیدی نیز از رخنه‌ی گران‌روی شارش جامدات چندبلوری که شامل شرح نابارو - هرینگ - کوبل و لغزش مرزدانه‌ای است، ارائه شد. در تنش‌های پایین، سرعت کرنش با اعمال تنش به طور خطی کنترل می‌شود. در تنش‌های بالا، یک وابستگی توانی با تنش اعمالی مشاهده شده است. استفاده از افزودنی، بسته به نوع و غلظت آن، پیچیدگی‌های دیگری نیز روی رفتار خزش به وجود می‌آورد [۵۰].

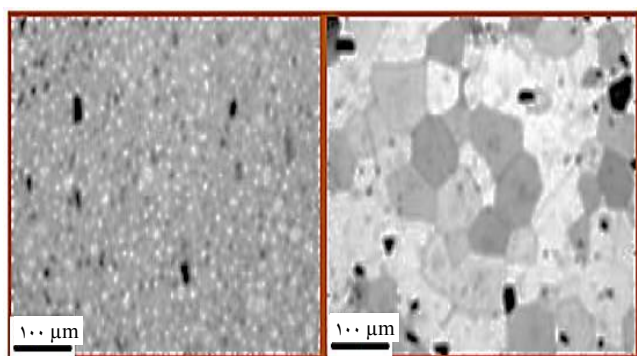
در سوخت UO_2 استاندارد، غلظت اولیه‌ی نابه‌جایی‌های متحرک برای ایجاد تغییر شکل کافی نیست و نشان می‌دهد نابه‌جایی‌ها، توسط مرزهای بین‌دانه‌ای قفل می‌شوند و تنش بالایی برای آغاز تغییر شکل، نیاز است. اضافه کردن ناخالصی‌هایی مثل

بررسی شده است. اندازه‌گیری‌های چگالی و تصویرهای میکروسکوپ‌های الکترونی روبشی و عبوری نمونه‌های سوخت تابش‌دهی شده نشان می‌دهند که حتی در نواحی داغ‌تر سوخت، رسوبی از تخلخل‌های گازی محصولات شکافت به مقدار زیادی به صورت تخلخل‌های درون‌دانه‌ای با قطر کم‌تر از $2 \mu m$ تشکیل شده‌اند [۳۹]. آزمایش‌های عملیات حرارتی نمونه‌ها نشان می‌دهند که درصد زیادی از گازها هنوز به صورت محلول در درون قرص وجود دارند و رابطه‌ای بین ذرات منیزیمی رسوب یافته در درون دانه و تخلخل‌های گازی خیلی کوچک وجود دارد. اندازه‌گیری غلظت این ذرات در سوخت‌های تابش‌دهی شده نشان می‌دهند که تعداد زیادی تخلخل روی رسوبات منیزیم جوانه‌زنی کرده‌اند. واکنش بین منیزیم و تخلخل‌های گازی، فرایند تحلیل گاز ناشی از واکنش هسته‌ای در درون شبکه را تحت تأثیر قرار داده و از این‌رو نفوذ اتم‌های گازی به مرزهای بین‌دانه‌ای را در بازدهی تولید انرژی بالا کاهش می‌دهد [۳۹]. بهترین شرایط قرص حاوی منیزیم برای کاربردهای با بازدهی تولید انرژی بالا، آن است که مقدار منیزیم آن بالا بوده و ریزساختارهایی با بیش‌ترین مقدار رسوبات درون‌دانه‌ای در واحد حجم، درون آن ایجاد شوند. این پدیده منجر به اصلاح رفتار تورمی ناشی از تخلخل‌های گازی و رها شدن محصولات شکافت هسته‌ای می‌شود. از این‌رو در هر حادثه‌ی اُفت فشار در بیرون غلاف، اُفت فشار گازی خیلی کم‌تری در درون غلاف رخ داده و هم‌زمان پرتوزایی آزاد شده از غلاف‌ها کاهش چشمگیری را نشان می‌دهد [۴۲، ۴۳]. آزمایش‌های طیف‌نگاری گاما نشان می‌دهند که نگهداری سزیم توسط قرص‌های حاوی منیزیم، به مقدار قابل‌ملاحظه‌ای افزایش می‌یابد [۳۹]. میزان نگهداری محصولات فرار و گازی ناشی از شکافت هسته‌ای درون قرص‌های حاوی منیزیم، بهبود می‌یابد.

برای کاهش تنش مکانیکی روی غلاف، قرص باید در دمای کاری به آسانی بتواند تغییر شکل پلاستیکی بدهد. خزش قرص UO_2 به حضور ناخالصی‌ها خیلی حساس است. خزش در اثر افزایش تحرک نابه‌جایی‌ها ناشی از حضور ناخالصی‌ها افزایش می‌یابد، زیرا ناخالصی‌ها، نفوذهای مؤثر را اصلاح می‌کنند. با افزایش قابلیت نگهداری گاز و افزایش خزش می‌توان اصلاحاتی را روی کنش قرص - غلاف انجام داد. هر دو هدف

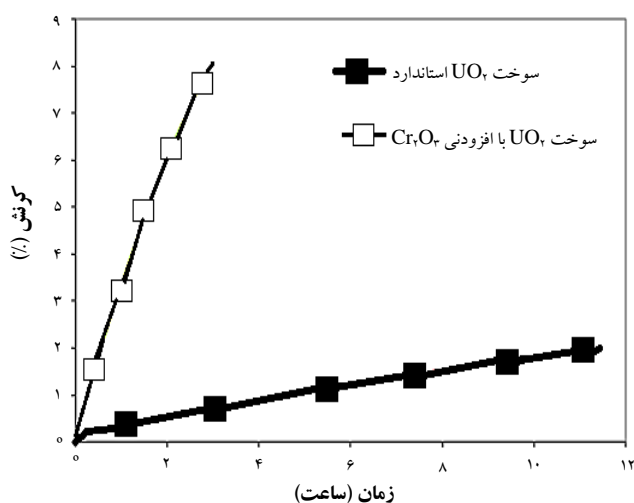


شکل ۳. آزمایش‌هایی با سرعت کرنش ثابت $\dot{\epsilon}=9\%/h$ در دمای $1500^\circ C$ [۳۸].



دی‌اکسید اورانیم با افزودنی اکسید کروم با اندازه‌ی دانه‌ی ۶۰ میکرومتر
دی‌اکسید اورانیم معمولی با اندازه‌ی دانه‌ی ۸ میکرومتر

شکل ۴. ریزساختار سوخت UO₂ پبشرفته [۳۸].



شکل ۵. تأثیر افزودن Cr₂O₃ بر رفتار خزشی در دمای $1500^\circ C$ و فشار ۴۵ MPa [۳۸].

اکسید کروم، مقاومت به تنش کم‌تری در سوخت به وجود می‌آورد (شکل ۳). با تشکیل محلول جامد از نوع $(U-Cr)O_x$ و نقص‌هایی در مقیاس‌های میکرو یا نانومتری توسط اکسید کروم که پس از سیتترینگ به صورت نامحلول باقی‌مانده و طی خنک شدن رسوب می‌کنند، شبکه سخت می‌شود. اما این سخت‌شدگی با افزایش اندازه‌ی دانه به مقدار زیادی جبران و منجر به افزایش تحرک نابه‌جایی‌ها در شبکه می‌شود. از این‌رو افزایش اکسید کروم به شبکه‌ی اکسید اورانیم، بیشینه‌ی تنش را از بین برده و تنش لازم برای شروع تغییر شکل را کاهش می‌دهد [۱۸].

نمونه‌ای از تغییر ریزساختار قرص سوخت هسته‌ای با ناخالصی اکسید کروم که در اتمسفر احیایی مرطوب سینتر شده است، با نمونه‌ی بدون استفاده از افزودنی در شکل ۴ مقایسه شده است. در بررسی تغییرات انجام شده روی خواص تغییر شکل پلاستیک، نتایج نشان می‌دهند که برخلاف رابطه‌ی عکس بین خزش و ریزساختارهای دانه درشت، قرص‌های با اندازه‌ی دانه‌ی بزرگ حاوی اکسید کروم، دارای موم‌سانی بهتری هستند. در این نوع سوخت، افزودنی‌های رشد‌دهنده‌ی دانه، اثر مفیدی روی سرعت خزش آن از طریق حرکت نابه‌جایی‌ها با سازوکارهای لغزش و بالا رفتن انرژی فعال‌سازی نزدیک به سرعت نفوذ خود اورانیم در UO_2 دارند. افزودن اکسید کروم، سرعت تغییر شکل UO_2 را در شرایط تنش بالای ۳۰ تا ۷۰ MPa افزایش می‌دهد (شکل ۵). پژوهش‌های دیگری نشان دادند که استفاده از افزودنی‌های اکسیدهای نیوبیم و کروم به مقدارهای اندک در درون رآکتور یا در فرایند سینتر، نفوذ خودبه‌خودی را در دمای بالا افزایش می‌دهد. این اثر منجر به سرعت خزش بالاتر قرص یا رفتار گران‌روی پلاستیکی بیش‌تر در مدت زمان کار رآکتور می‌شود و به این طریق تماس نرم‌تری بین قرص و غلاف در مدت زمان تماس این دو با یک‌دیگر ایجاد می‌شود [۷-۱۰].



پایین تر از دمای جوش سزیم باشد، بخارهای آن در فضای بین غلاف و سوخت فشرده شده و ترکیباتی مثل اورانات سزیم $Cs_2UO_{7/56}$ تشکیل می‌دهند. در بازدهی تولید انرژی بالا، زمانی که میانگین آن به مقدار 45 GWd/tU می‌رسد، مخلوط مواد شیمیایی که بین قرص و غلاف وجود دارند یک پیوند نرم تشکیل می‌دهند. هدایت حرارتی پیوند شیمیایی جدید، خیلی بهتر از مخلوط گازهای هلیوم و زنون در فضای بین غلاف و قرص است و به کاهش دمای سوخت کمک می‌کند. هم‌چنین این پیوند شیمیایی خیلی نرم‌تر از UO_2 است، از این نظر نیز تأثیر مفیدی در ویژگی‌های مکانیکی دارد به طوری که باعث رهایی بیشینه‌ی تنش در سطح درونی غلاف می‌شود. در نتیجه، پیوند شیمیایی نرم بین قرص و غلاف و مقاومت در برابر کنش بین قرص و غلاف^(۱۰) (PCI)، بازدهی تولید انرژی را بهبود می‌بخشد [۵۲].

۳.۲ نقش انتقال حرارت در افزایش میزان تولید انرژی

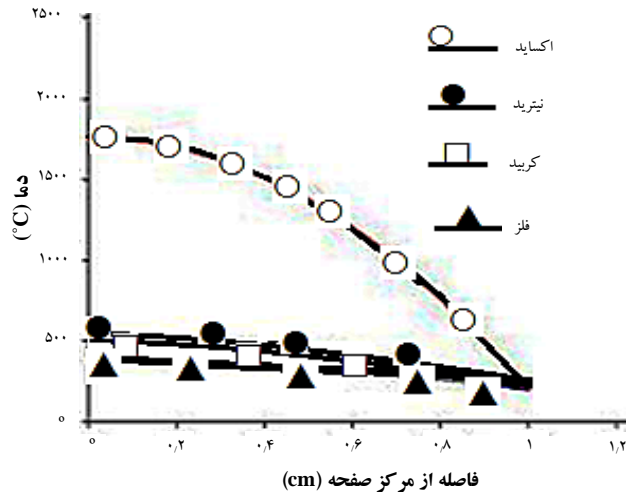
در قرص سوخت هسته‌ای مورد مطالعه، به علت نقطه‌ی ذوب بالای آن، از اکسید فلزی به جای خود فلز استفاده می‌شود. هدایت حرارتی غلاف‌های سوخت از جنس دی‌اکسید اورانیم نسبت به فلز اورانیم، نیتريد اورانیم، کربید اورانیم و زیرکونیم بسیار کم‌تر است. هر چه دما بالاتر باشد، این اختلاف بیش‌تر خواهد بود. شیب دما بین مرکز و سطح بیرونی در ترکیبات مختلف اورانیم و در شرایط مقدار حرارت تولیدی یکسان در شکل ۶ نشان داده شده است. همان‌گونه که مشخص است، دمای مرکز این قرص‌ها با یک‌دیگر بسیار متفاوت هستند. در قرص‌های سوخت هسته‌ای، با افزایش بازدهی تولید انرژی، نقص‌هایی هم‌چون ناخالصی‌های حاصل از محصولات شکافت، تخریب‌های ناشی از تابش‌دهی، مواد ته‌نشین شده، ناهمگنی‌های در اندازه‌ی ریز^(۱۱) و اندازه‌ی درشت^(۱۲) هم‌چون حباب‌ها، ترک‌ها و غیره، انباشته شده و باعث کاهش بیش‌تر هدایت حرارتی می‌شود. هم‌چنین به وجود آمدن تخلخل در ناحیه‌ی حاشیه‌ای قرص در اثر بالا رفتن بازدهی تولید انرژی نیز باعث تشدید کاهش هدایت حرارتی و گرم شدن بیش از حد بخش مرکزی قرص می‌شود [۴، ۲۸، ۴۱، ۵۳، ۵۴].

افزودن SiO_2 به قرص سوخت، یک فاز شیشه‌ای ثانویه‌ای در مرز دانه ایجاد می‌کند که موجب افزایش سرعت خزش از طریق لغزش مرز دانه‌ای می‌شود. افزودن سیلیس به همراه هر کدام از اکسیدهای با نوع ساختار کورانندوم نیز فاز شیشه‌ای بین‌دانه‌ای ایجاد می‌کند. بررسی‌ها به خوبی نشان داده‌اند که خزش مواد سرامیکی به شدت به خواص فاز مرز دانه‌ای مثل توزیع، رفتار ترک‌ندگی، کسر حجمی و بلوری شدن آن بستگی دارد. معمولاً فاز مرز دانه‌ای شیشه‌ای، سرعت خزش مواد سرامیکی را افزایش می‌دهد. برعکس تبلور فاز شیشه‌ای مرز دانه‌ای، مقاومت در برابر خزش را در مواد سرامیکی افزایش می‌دهد. در یک پژوهش، اثر افزودن ۰/۲۲ درصد وزنی از ماده‌ی $SiO_2-CaO-Cr_2O_3$ به UO_2 مطالعه شده است. نتایج نشان می‌دهند سرعت خزش در تنش‌های پایین به شدت افزایش پیدا می‌کند و مقدار آن به افزایش مقدار فاز شیشه‌ای بین‌دانه‌ای بستگی دارد [۵۱].

تشکیل سوراخ و ترک در دیواره‌ی غلاف تقریباً در نواحی که قرص و غلاف در تماس هستند و هم‌زمان تنش مکانیکی از طریق تورم قرص به غلاف اعمال می‌شود، در حضور اجزای خورنده‌ای مثل ید تشدید می‌شود. وقتی که بین سوخت و غلاف اتصال برقرار می‌شود، در این نواحی اتصال، غلاف از طریق نفوذ حالت جامد اکسیژن، اکسید می‌شود. بنابراین در دیواره‌ی درونی غلاف زیرکونیمی، همیشه لایه‌های اکسیدی پیدا می‌شوند که گستردگی و ضخامت آن با افزایش بازدهی تولید انرژی، افزایش می‌یابد. البته مصرف اکسیژن اضافی از این طریق موجب افزایش پایداری سوخت استوکیومتری می‌شود. در غیر این صورت مقدار اکسیژن در سیستم افزایش پیدا می‌کند و بسته به دما و مطابق با نمودار فازی اکسیژن و اورانیم، ابتدا UO_{2+x} و سپس U_4O_9 و یا مخلوط‌هایی از ترکیبات غیراستوکیومتری U_4O_9 ، U_5O_{13} و احتمالاً U_2O_8 تشکیل می‌شوند [۲۷، ۳۵، ۵۰]. داخل غلاف به طور جزئی با رسوباتی از محصولات فرار شکافت نیز پوشیده می‌شود. سزیم که از تحرک بالایی برخوردار است، یکی از این اجزا است. پوشش با رسوباتی از این نوع در فصل مشترک بین قرص‌ها و سطح‌های ترک‌ها نیز انجام می‌شود. در فشار 0.1 MPa ، دمای جوش سزیم 685°C است و مانند زنون و کریپتون در دانه نفوذ می‌کند. اگر دما در سطح داخلی غلاف

هدایت حرارتی در دو نوع قرص UO_2 خالص و قرص با افزودنی اکسیدهای زیرکونیم و نئودیمیم بررسی شد. یافته‌ها نشان می‌دهند که هدایت حرارتی قرص حاوی افزودنی اکسیدی در بازدهی تولید انرژی بالا نسبت به قرص خالص در شرایطی که فضای بین غلاف-قرص کم شده بود، بیش‌تر است. در حالی که قبل از پرتوگیری، هدایت حرارتی قرص خالص بیش‌تر بود [۵۷]. برای مقدار بازدهی تولید انرژی در محدوده‌ی 44 GWd/tU ، مقدار هدایت حرارتی قرص UO_2 خالص و قرص با افزودنی اکسیدی، هر دو یکسان بودند [۵۶]. هدایت حرارتی سوخت رآکتورهای آب تحت فشار $(PWR)^{(۱۳)}$ با میانگین بازدهی تولید انرژی 102 MWd/kgU مطالعه شده است. یافته‌ها نشان می‌دهند که هدایت حرارتی در ناحیه‌ی بیرونی سوخت خیلی بیش‌تر از حالتی است که ساختار ناحیه‌ی حاشیه‌ای تشکیل نشده است. افزایش در هدایت حرارتی، به حذف محصولات شکافت از شبکه‌ی جامد قرص و ایجاد نقص‌ها و محلول‌های جامد ناشی از پرتوگیری در شبکه‌ی سوخت و تبلور مجدد نسبت داده می‌شود. تخلخل گازی، میزان هدایت حرارتی را کم می‌کند ولی اندازه‌ی کاهش آن در مقایسه با افزایش و در نتیجه تشکیل ساختار جدید کم‌تر است [۲۸].

در مطالعه‌ای، نفوذ حرارتی سوخت‌های $(U,Gd)O_2$ برای مقادیر بازده‌های تولید انرژی از 33 تا 97 GWd/tU و برای دماهای تابش‌دهی از 400 تا 1310°C اندازه‌گیری شده است. داده‌های به دست آمده هدایت حرارتی کم‌تری را برای $(U,Gd)O_2$ در مقایسه با اکسید اورانیم خالص نشان می‌دهند [۵۳]. اکسید بریلیم یک ماده‌ی افزودنی بی‌نظیر دیگری برای بالا بردن هدایت حرارتی قرص‌های سوخت UO_2 است. ساختار این قرص‌های به صورت دانه‌های ریز UO_2 با ابعاد $500 \mu\text{m}$ است که در یک ماتریس اکسیدی مخلوط شامل دانه‌های بسیار ریز BeO و UO_2 با ابعاد یک میکرومتر جاسازی می‌شود. نمودار دمای قرص سوخت‌های UO_2 و BeO $10\% \text{ Vol } UO_2$ در شکل ۷ نشان داده شده است. در هر دو نوع سوخت، دمای غلاف، خنک‌کننده و فاصله‌ی فضای بین قرص-غلاف یکسان هستند و تنها دمای مرکز سوخت در دو نوع قرص با هم تفاوت دارد. مشاهده می‌شود که دما در مرکز سوخت BeO $10\% \text{ Vol } UO_2$ ، 150 درجه‌ی سانتی‌گراد از قرص UO_2 کم‌تر است [۵۸].



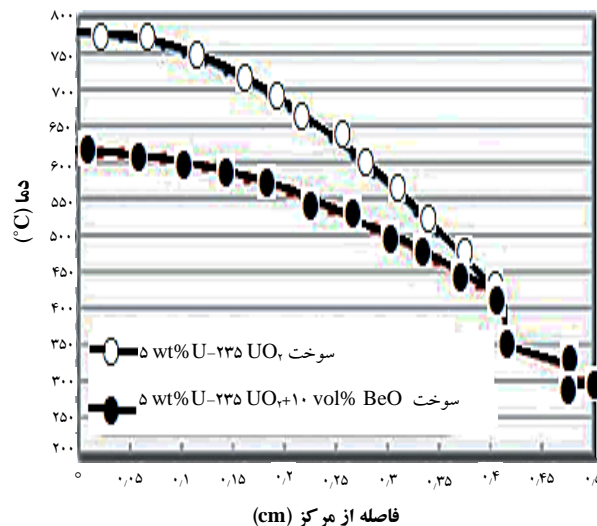
شکل ۶. تغییرات شعاعی دمای درون قرص سوخت هسته‌ای اورانیم با ترکیب‌های مختلف [۵۵].

وجود رسوبات فلزی در قرص سوخت هسته‌ای، هدایت حرارتی را به میزان زیادی نسبت به زمانی که قرص سوخت تنها به صورت اکسیدی است، افزایش می‌دهد. افزایش انتقال حرارت باعث کاهش شیب دما بین مرکز و سطح خارجی قرص شده و دمای مرکز قرص به میزان زیادی کاهش می‌یابد. وجود دمای پایین در مرکز قرص، باعث کم شدن تحرک گازهای حاصل از شکافت و در نتیجه موجب کاهش میزان آزاد شدن این گازها می‌شود. بنابراین سعی می‌کنند از افزودنی‌هایی در قرص استفاده شود که هدایت حرارتی آن را افزایش دهد تا دمای مرکز قرص زیاد بالا نرود. عملیات حرارتی پس از سینتر قرص سوخت حاوی رسوب اکسید کروم در محیط احیایی، موجب احیای اکسید کروم به کروم فلزی می‌شود که برای افزایش هدایت حرارتی، جذب اکسیژن‌های حاصل از شکافت و کنترل پتانسیل اکسیژن سوخت خیلی مفید است [۳۵، ۴۷، ۵۶]. در مطالعه‌ای در همین زمینه، اندازه‌گیری لحظه به لحظه دمای مرکزی میله‌های سوخت طی پرتودهی تا بازدهی تولید انرژی بالای 9 GWd/tU سوخت انجام شد. یافته‌ها نشان دادند که در سوخت‌های حاوی اکسید کروم هیچ‌گونه کاهش هدایت حرارتی در مقایسه با قرص اکسید اورانیم استاندارد رخ نمی‌دهد. عملیات حرارتی در دمای 1700°C به مدت ۵ ساعت پس از تابش‌دهی روی نمونه‌های سوخت حاوی اکسید کروم نسبت به نمونه‌های UO_2 استاندارد، باعث کاهش سه برابری آزادسازی گاز حاصل از شکافت هسته‌ای شد [۳۵، ۴۴، ۴۵].



پی‌نوشت‌ها

1. Creep
2. Gigawatt day per ton of uranium (گیگاوات روز به ازای هر تن اورانیم)
3. Reactor power ramping
4. Zircaloy-4
5. Eddy current
6. Plasticity
7. Sintering
8. Nabarro-herring
9. Coble
10. Pellet-clade interaction
11. Microscopic
12. Macroscopic
13. Pressurized water reactors



شکل ۷. دمای سوخت‌های UO_2 و UO_2 (BeO 10٪ Vol) در آغاز دوره‌ی سوخت [۵۸].

۳. نتیجه‌گیری

در اثر افزایش بازدهی تولید انرژی و افزایش میزان حلالیت محصولات شکافت درون شبکه‌ی سوخت و خرد شدن تخلخل‌های اولیه، ساختار ریزدانه در نواحی حاشیه‌ای تشکیل می‌شود. استفاده از کمک سینترها موجب افزایش اندازه‌ی دانه و رسوب درون‌دانه‌ای به منظور حبس اتم‌های گازی و جلوگیری از تورم قرص و آزادی آن‌ها به فضای خالی بین غلاف و قرص می‌شود. هم‌چنین در اثر افزودنی‌ها، سرعت خزش قرص بالا رفته و در نتیجه‌ی آن، آسیب ناشی از کنش مکانیکی بین قرص - غلاف کم‌تر می‌شود. افزایش در هدایت حرارتی قرص در نتیجه‌ی حضور اتم‌های فلزی و یا در نتیجه‌ی حضور برخی از افزودنی‌ها در کاهش دمای مرکز قرص و کاهش خروج محصولات شکافت گازی بسیار مؤثر هستند. در صورتی که تماس بین سوخت و غلاف ایجاد شده باشد، در اثر کنش‌های مکانیکی بیش‌تر و در حضور محصولات خوردنده‌ای مثل ید، غلاف خورده شده و سوراخ می‌شود. این عمل و هم‌چنین تغییرات میزان اکسیژن درون قرص باعث ایجاد لایه‌های اکسیدی درون غلاف و هم‌چنین افزایش میزان اکسایش سوخت هسته‌ای می‌شود.



- [1] J. Spino, J. Rest, W. Goll, C.T. Walker, Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO_2 fuels at high burn-up, *J. of Nucl. Mater.*, 346 (2005) 131–144.
- [2] J.Y. Colle, J.P. Hiernaut, D. Papaioannou, C. Ronchi, A. Sasahara, Fission product release in high-burn-up UO_2 oxidized to U_3O_8 , *J. of Nucl. Mater.*, 348 (2006) 229–242.
- [3] N.A. Kudryashov, A.V. Khlunov, M.A. Chmykhov, Thermal regimes of high burn-up nuclear fuel rod, *Commun. Nonlinear Sci. Numer. Simulat.*, 15 (2010) 1240–1252.
- [4] M. Teague, M. Tonks, S. Novascone, S. Hayes, Microstructural modeling of thermal conductivity of high burn-up mixed oxide fuel, *J. of Nucl. Mater.*, 444 (2014) 161–169.
- [5] F.B. Tas, S. Ergun, Effects of pellet-to-cladding gap design parameters on the reliability of high burn-up PWR fuel rods under steady state and transient conditions, *Energy Conversion and Management*, 72 (2013) 88–93.
- [6] S.C. Middleburgh, R.W. Grimes, K.H. Desai, P.R. Blair, L. Hallstadius, K. Backman, P. Van Uffelen, Swelling due to fission products and additives dissolved within the uranium dioxide lattice, *J. of Nucl. Mater.*, 427 (2012) 359–363.
- [7] A.R. Massih, L.O. Jernkvist, Effect of additives on self-diffusion and creep of UO_2 , *Computat. Mater. Sci.*, 110 (2015) 152–162.
- [8] B. Cox, Pellet-clad interaction (PCI) failures of zirconium alloy fuel cladding—a review, *J. Nucl. Mater.*, 172 (1990) 249–292.
- [9] NEA-OECD, Pellet-Clad Interaction in Water Reactor Fuels, NEA No. 6004, Organization for Economic Cooperation and Development, Paris, 2005, Seminar Proceedings, Aix-en-Provence, France, (9-11 March 2004).
- [10] S. Doi, Improvement of fuel pellet for high burn-up, IAEA-TCM' fuel performance at high burn-up for WRs, Studsvik, Suedia (1990).
- [11] I. Harada, S. Doi, S. Abeta, K. Yamata, Behaviour of large grain UO_2 pellet by new ADU powder, *proc. IAEA Tech. Com. Meeton water reactor fuel element modeling at high burn-up and its experimental support*, Bownesson Windermere, UK (1994).
- [12] F. Garzarolli, R. Holzer, Water side corrosion performance of light water power reactor fuel, *Nucl. Energy*, 31 (1992) 65-86.
- [13] G.R. Kilp, Corrosion experience with zircaloy and ZIRLO™ In operating PWRs, *proc. ANS/ENST opical meeting on LWR fuel performance*, avignon, France (1991) 730-741.
- [14] I. Antoniou, V.V. Ivanov, B.F. Kostenko, J. Spino, A.D. Stalios, Fractal analysis of high burn-up structures in UO_2 , *Chaos, Solitons and Fractals* 19 (2004) 731–737.
- [15] C.T. Walker, T. Kameyama, S. Kitajima, M. Kinoshita, Concerning the microstructure changes that occur at the surface of UO_2 pellets on irradiation to high burn-up, *J. of Nucl. Mater.*, 188 (1992) 73-79.
- [16] M.E. Cunningham, M.D. Freshley, D.D. Lanning, Development and characteristics of the rim region in high burn-up UO_2 fuel pellets, *J. of Nucl. Mater.*, 188 (1992) 19-27.
- [17] Chubb, Nuclear fuel pellet design to minimize dimensional changes, United State Patent NO.4, 094, 738, France (1978).
- [18] S. Caruso, Characterisation of high-burn up LWR fuel rods through gamma tomography, *Doctoral THESE NO 3762*, France, (2007).
- [19] V.V. Rondinella, T. Wiss, The high burn-up structure in nuclear fuel, *materials today*, 13 [12] (2010) 24-32.
- [20] P. Fors, P. Carbol, S. Van Winckel, K. Spahiu, Corrosion of high burn-up structured UO_2 fuel in presence of dissolved H_2 , *J. of Nucl. Mater.*, 394 (2009) 1–8.
- [21] 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.



- [22] P. Blair, Modelling of fission gas behavior in high burn-up nuclear fuel, Thèse No 4084, Programme Doctoral en Energie École Polytechnique Fédérale De Lausanne Pour L'obtention Du Grade De Docteur És Sciences, Suisse (2008) 160.
- [23] J. Noirot, L. Desgranges, J. Lamontagne, Detailed characterisations of high burn-up structures in oxide fuels, *J. of Nucl. Mater.*, 372 (2008) 318–339.
- [24] C. Jegou, M. Gennisson, S. Peugeot, L. Desgranges, G. Guimbretière, M. Magnin, Z. Talip, P. Simon, Raman micro-spectroscopy of UOX and MOX spent nuclear fuel characterization and oxidation resistance of the high burn-up structure, *J. of Nucl. Mater.*, 458 (2015) 343–349.
- [25] J. Cobos, D. Papaioannou, J. Spino, M. Coquerelle, Phase characterisation of simulated high burn-up UO fuel, *J. of Alloys and Compounds*, 271–273 (1998) 610–615.
- [26] J. Spino, D. Papaioannou, Lattice parameter changes associated with the rim-structure formation in high burn-up UO₂ fuels by micro X-ray diffraction, *J. of Nucl. Mater.*, 281 (2000) 146–162.
- [27] C.T. Walker, V.V. Rondinella, D. Papaioannou, S.V. Winkel, W. Goll, R. Manzel, On the oxidation state of UO₂ nuclear fuel at a burn-up of around 100 MWd/kgHM, *J. of Nucl. Mater.*, 345 (2005) 192–205.
- [28] C.T. Walker, D. Staicu, M. Sheindlin, D. Papaioannou, W. Goll, F. Sontheimer, On the thermal conductivity of UO₂ nuclear fuel at a high burn-up of around 100 MWd/kgHM, *J. of Nucl. Mater.*, 350 (2006) 19–39.
- [29] M.S. Veshchunov, V.E. Shestak, Model for evolution of crystal defects in UO₂ under irradiation up to high burn-ups, *J. of Nucl. Mater.*, 384 (2009) 12–18.
- [30] M. Salvoa, J. Sercombe, J.C. Ménard, J. Julien, T. Helfer, T. Désoyer, Experimental characterization and modelling of UO₂ behavior at high temperatures and high strain rates, *J. of Nucl. Mater.*, 456 (2015) 54–67.
- [31] B. Michel, J. Sercombe, G. Thouvenin, A new phenomenological criterion for pellet-cladding interaction rupture, *Nuclear Engineering and Design* 238 (2008) 1612–1628.
- [32] D. Ohai, Technologies for manufacturing UO₂ sintered pellets to fuel burn-up extension, Institute for Nuclear Research, Pitesti, Romania, 193-209.
- [33] K. Une, I. Tanabe, M. Oguma, Effects of additives and the oxygen potential on the fission gas diffusion in UO₂ fuel, *J. of Nucl. Mater.*, 150 (1987) 93-99.
- [34] S. Valin, L. Caillot, Ph. Dehaut, Y. Guerin, A. Mocellin, C. Delafoy, A. Chotard, Synthesis of the results obtained on the advanced UO₂ microstructures irradiated in the Tanox device, advanced fuel pellet materials and designs for water cooled reactors, proceedings of a technical committee meeting held in Brussels, 20–24 (2003) 175-186.
- [35] J.H. Yang, K.S. Kim, I.H. Nam, J.S. Oh, D.J. Kim, Y.W. Rhee, J.H. Kim, Effect of step wise variation of oxygen potential during the isothermal sintering on the grain growth behavior in Cr₂O₃ doped UO₂ pellets, *J. of Nucl. Mater.*, 429 (2012) 25–33.
- [36] Y.C. Cho, Dependence on Sintering Atmosphere and Cr₂O₃ Additive of the Behavior of Grain Growth and Densification of Uranium Dioxide, MS. Thesis, Chungnam National University, Korea (2005).
- [37] C. Delafoy, P. Dewes, T. Miles, A. NP, Cr₂O₃-doped fuel development for BWRs, in: Proceedings of International LWR Fuel Performance Meeting, San Francisco, USA, (2007) 1071.
- [38] C. Delafoy, P. Blanpain, S. Lansiant, P. Dehaut, G. Chiarelli, R. Castelli, Advanced PWR fuels for high burn-up extension and PCI constraint elimination, Advanced fuel pellet materials and designs for water cooled reactors, Proceedings of a technical committee meeting held in Brussels, 20–24 (2003) 163-173.
- [39] P.T. Sawbridge, C. Baker, The irradiation performance of magnesia-doped UO₂ fuel, *J. Nucl. Mater.*, 95 (1980) 119-128.
- [40] J. Hastings, Effect of initial grain size on fission gas release from irradiated UO₂ fuel, *Commun. of the Am. Ceram. Soc.*, (1983) C150-151.



- [41] G. Rossiter, M. Mignanelli, A report prepared for and on behalf of the Nuclear Decommissioning Authority (NDA), The characteristics of LWR fuel at high burn-up and their relevance to AGR spent fuel, NNL (10) 10930, 2, (2011).
- [42] J. Nakamura, Thermal diffusivity of high burn-up UO₂ pellet irradiated at HBWR, Proceedings of the Seminar on thermal performance of high burn-up LWR fuel, Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) Cadarache, France, (3-6 March 1998) 43-55.
- [43] S.M. McDeavitt, J. Ragusa, S.T. Revankar, A.A. Solomon, J. Malone, A high-conductivity oxide fuel concept, American Beryllia INC. 15 (2011).
- [44] F. Dherbey, F. Louchet, A. Mocelling, S. Leclercq, Elevated temperature creep of polycrystalline uranium dioxide: from microscopic mechanisms to macroscopic behaviour, Acta Materialia, 50 (2002) 1495–1505.
- [45] F. Saiter, S. Leclercq, Modeling of the non-monotonous viscoplastic behavior of uranium dioxide, J. of Nucl. Mater., 322 (2003) 1–14.
- [46] N. Marchal, C. Campos, C. Garnier, Finite element simulation of Pellet-Cladding Interaction (PCI) in nuclear fuel rods, Computat. Mater. Sci., 45 (2009) 821–826.
- [47] L. Bourgeois, P. Dehaut, C. Lemaignan, A. Hammou, Factors governing microstructure development of Cr₂O₃-doped UO₂ during sintering, J. Nucl. Mater., 297 (2001) 313–326.
- [48] J. Arborelius, K. Backman, L. Hallstadius, M. Limback, J. Nilsson, B. Rebensdorff, G. Zhou, K. Kitano, R. Lofstrom, G. Ronnberg, advanced doped UO₂ pellets in LWR applications, J. of Nucl. Sci. & Techn., 43 (2006) 967–976.
- [49] C. Nonon, J.C. Menard, S. Lansart, J. Noirot, S. Martin, G.M. Decroix, O. Rabouille, C. Delafoy, B. Petitprez, PCI behavior of chromium oxide doped fuel, in: Proceedings of the International Seminar on PCI with Water Reactor Fuel, Aixen-Provence, France, (2004) 305-319.
- [50] B. Michel, J. Sercombe, G. Thouvenin, A new phenomenological criterion for pellet-cladding interaction rupture, Nuclear Engineering and Design 238 (2008) 1612–1628.
- [51] Y.W. Rhee, K.W. Kang, K.S. Kim, J.H. Yang, J.H. Kim, K.W. Song, Effect of SiO₂-CaO-Cr₂O₃ on the creep property of uranium dioxide, Engineering and Technology, 37 [3] (2005) 287-292.
- [52] Materials today, characterisation of high-burn-up LWR fuel rods through gamma, 13, 12 (2010) 24–32.
- [53] D. Staicu, V.V. Rondinella, C.T. Walker, D. Papaioannou, R.J.M. Konings, C. Ronchi, M. Sheindlin, A. Sasahara, T. Sonoda, M. Kinoshita, Effect of burn-up on the thermal conductivity of uranium–gadolinium dioxide up to 100 GWd/tHM, J. of Nucl. Mater., 453 (2014) 259–268.
- [54] S. Nichenko, D. Staicu, Thermal conductivity of porous UO₂: Molecular Dynamics study, J. of Nucl. Mater., 454 (2014) 315–322.
- [55] S.M. McDeavitt, J. Ragusa, S.T. Revankar, A.A. Solomon, J. Malone, A high-conductivity oxide fuel concept, Nuclear Engineering International, 56 (2011) 40-42.
- [56] D. Staicu, C. Cozzo, G. Pagliosa, D. Papaioannou, S. Bremier, V.V. Rondinella, C.T. Walker, A. Sasahara, Thermal conductivity of homogeneous and heterogeneous MOX fuel with up to 44 MWd/kgHM burn-up, J. of Nucl. Mater., 412 (2011) 129–137.
- [57] N. Nakae, H. Akiyama, H. Miura, T. Baba, K. Kamimura, S. Kurematsu, Y. Kosaka, A. Yoshino, T. Kitagawa, Thermal property change of MOX and UO₂ irradiated up to high burn-up of 74 GWd/t, J. of Nucl. Mater., 440 (2013) 515–523.
- [58] M. Nazir, BeO-UO₂ Fuel, Stanford University, (2011).