

TITULO
 DETERMINAÇÃO DE PARÂMETROS DO $ThO_2 + 5\% UO_2$ PARA
 ADAPTAÇÃO DO MODELO DE DENSIFICAÇÃO ABMANN E STEHLE

NOTAS CORRELATAS
 DETR.PD 098/80
 DETR.PD 109/80

OBJETIVO
 Calcular as propriedades materiais necessárias à adaptação do modelo de Densificação Abmann e Stehle para o caso $ThO_2-5\% UO_2$.

LISTA DE DISTRIBUIÇÃO

SUPED	* (1)
ASPC.PD	* (1)
DETR.PD	(2)
DIAAC.PD	()
DIECB.PD	(1)
DIFNU.PD	()
DISCO.PD	()
DITES.PD	()
LABFRE.PD	()
LABTEH.PD	()
AUTOR(ES)	(1)
SEDOTE.PD	* (1)
OUTROS	
DITCO.PD	(1)

* Apenas folha de rosto

RESUMO E CONCLUSÕES
 Este trabalho resume as idéias utilizadas no cálculo das propriedades materiais do óxido misto $ThO_2-5\% UO_2$. Grandes incertezas se encontram ainda em todas estas propriedades, principalmente nos coeficientes de difusão, onde medidas são necessárias. Com estas propriedades será tentado fazer uma previsão da estabilidade das atuais microestruturas de pastilhas combustíveis a base de $ThO_2-5\% UO_2$ que estão sendo obtidas nos laboratórios da KWU. Este será o assunto de outra Nota Técnica.

ÍNDICE

1. Introdução	2/14
2. Comprimento do Traço de Fissão	2/14
3. Cálculo do Volume Fundido em Torno do Traço de Fissão	5/14
4. Duração do Volume Fundido em Torno do Traço de Fissão	6/14
5. Cálculo de D_{irr}	7/14
6. Cálculo do Volume w para $ThO_2-5\%UO_2$	7/14
7. Coeficientes de Difusão	8/14
8. Diagrama de Arrhenius para a Taxa de Encolhimento de Poros no Caso $(Th-5\%U)O_2$	9/14
Referências	10/14
Tabelas	11/14
Figuras	13/14



cm.

Nº. CÓPIAS 8

AUTOR(ES)	VISTO	DATA	APROVAÇÃO	VISTO	DATA
F.S.LAMEIRAS	<i>[Signature]</i>	21.02.80	CHEFE DO LAB. CU GRUPO		
			CHEFE DA DIVISÃO	<i>[Signature]</i>	25.02.80
			CHEFE DO DEPARTAMENTO	<i>[Signature]</i>	25.02.80
CLASSIFICADO			TAREX: 11.21.03		

DETERMINAÇÃO DE PARÂMETROS DO $\text{ThO}_2 + 5\% \text{UO}_2$ PARA ADAPTAÇÃO DO MODELO DE DENSIFICAÇÃO ABMANN E STEHLE

1. INTRODUÇÃO

O modelo de densificação desenvolvido por Abmann e Stehle tem sido aceito como uma teoria geral da densificação. Ela abrange tanto a densificação induzida por via térmica como a induzida por via atômica (ou seja, pelos fragmentos de fissão). Ela pode ser encontrada nas referências [1] ou [6] e a sua utilização para o tório se resume apenas em introduzir os valores adequados dos dados de entrada, conforme a tabela 2.

A seguir se encontra o tratamento dado a cada uma destas propriedades da tabela 2.

2. COMPRIMENTO DO TRAÇO DE FISSÃO

Conforme [2] o poder de freamento de um material é dado por:

$$\frac{dE}{dy} = -R(\sqrt{E_0} - \frac{1}{2} Ry) \quad (1)$$

onde:

E_0 = energia inicial do fragmento de fissão = 100 MeV

$$R = \frac{8\pi N a_0 e^2 Z_1^{7/6}}{v_0} \left(\frac{Z_1}{M}\right)^{1/2} \left[1 + \left(\frac{Z_1}{Z_2}\right)^{2/3} \right]^{3/2}$$

a_0 = raio de Bohr;

v_0 = velocidade do eletrôn;

e = carga do eletrôn;

N = número de Avogadro;

y = distância do ponto onde a fissão ocorreu;

E = energia do fragmento à distância y ;

Z_1, Z_2 = número atômico do fragmento de fissão e do material

M = massa atômica do fragmento.

R pode mais simplesmente ser escrito como:

$$R = f(Z_1; M) \frac{1}{\left[1 + \frac{Z_1^{2/3}}{Z_2}\right]^{3/2}} \quad (2)$$

Com a suposição de que $Z_1 = 40$ obtemos os seguintes valores:

Para o urânio:

$$R(U) = 0,506 \cdot f(40; M) \quad (3)$$

Para o tório:

$$R(Th) = 0,502 \cdot f(40; M) \quad (4)$$

Para o oxigênio:

$$R(O) = 0,209 \cdot f(40; M) \quad (5)$$

Para o UO_2

$$R(UO_2) = R(U) + 2 \times R(O) = 0,924 \cdot f(40; M) \quad (6)$$

Para $ThO_2 - 5\% UO_2$:

$$R(\text{ThO}_2\text{-5\%UO}_2) = 0,95R(\text{Th}) + 0,05R(\text{U}) + 2xR(\text{O}) = 0,920 \cdot f(40;M) \quad (7)$$

ou seja:

$$R(\text{ThO}_2\text{-5\%UO}_2) = R(\text{UO}_2) \quad (8)$$

Conforme [7, 8], distribuição de temperatura em torno do fragmento de fissão é calculado através da equação (9):

$$T = \bar{T} + T_0 e^{-x} \quad (9)$$

onde:

$$T_0 = \frac{(dE/dy)}{4C_p \rho k (t+t_0)}$$

\bar{T} = temperatura média no combustível

$$x = \frac{r^2}{4k(t+t_0)}$$

r = distância radial a partir do eixo do traço de fissão;

C_p = calor específico;

ρ = densidade teórica;

k = difusividade térmica,

t = tempo;

t_0 = tempo mínimo necessário para que o primeiro efeito térmico possa ser tratado.

A condutividade térmica $K = C_p \rho k$ pode, conforme 4 para $\text{ThO}_2\text{-5\% UO}_2$ denso, ser calculada através da equação (10):

$$K(\bar{T}) \left[\frac{W}{\text{cm} \text{ } ^\circ\text{C}} \right] = \frac{0,995}{0,793+0,0185\bar{T}} \quad (10)$$

O comprimento do traço de fissão é definido como a distância na qual T na eq.(9) (para $r = 0$ e $t = 0$) torna-se igual a $T_{\text{fusão}}$. Ou seja:

$$\frac{dE}{dy} = 4K(\bar{T}) \cdot t_0 (T_{\text{fusão}} - \bar{T}) \quad (11)$$

Através de (8) e (1) podemos constatar que:

$$\frac{dE}{dy}^{\text{ThO}_2-5\%UO_2} = \frac{dE}{dy}^{UO_2} \quad (12)$$

Conforme figura 7 de [2]:

$$\frac{dE}{dy} = 2,67 \times 10^{-8} \frac{J}{cm} - 2,23 \times 10^{-19} \frac{J}{cm} \frac{x}{[\mu m]} \quad (13)$$

Com as equações (11) e (13), $\lambda(\bar{T})$ (comprimento do traço de fissão) pode facilmente ser calculado.

Conforme [4]:

$$T_{\text{fusão}}^{\text{ThO}_2-5\%UO_2} = 3250^\circ C \quad (14)$$

3. CÁLCULO DO VOLUME FUNDIDO EM TORNO DO TRAÇO DE FISSÃO

Para um traço de fissão cônico:

$$\Omega_s = \frac{1}{3} \pi r^2 \lambda \quad (15)$$

onde:

$$\Omega_s = \text{volume do traço de fissão}$$

r = raio de fusão para $t=0$ no local da fissão

λ = comprimento de fusão do fragmento de fissão

r^2 = pode ser calculado através da equação 9:

$$r^2 = 4kt_0 \ln \left(\frac{T_0}{T_{\text{fusão}} \bar{T}} \right) \quad (16)$$

k é definido como:

$$k = \frac{K}{C_p \rho} \quad (17)$$

onde:

K = condutividade térmica

C_p = capacidade térmica

ρ = densidade teórica

Conforme [4]:

$$C_p^{\text{ThO}_2-5\%UO_2} \approx C_p^{\text{ThO}_2} \quad (18)$$

$$\rho^{\text{ThO}_2-5\%UO_2} = 10,05 \text{ g/cm}^3 \quad (19)$$

4. DURAÇÃO DO VOLUME FUNDIDO EM TORNO DO TRAÇO DE FISSÃO

A duração do volume fundido τ é definida como a duração da fusão no ponto onde ocorreu fissão. Através da equação (9) τ pode ser calculado como segue:

$$\tau + t_0 = \frac{dE/dy}{4K(\bar{T})} \frac{l}{T_{\text{fusão}} - \bar{T}} \quad (20)$$

DETR.PD-073/79

t_0 é tomado como em [1]:

$$t_0 = 10^{-11} \text{ sec} \quad (21)$$

5. CÁLCULO DE D_V^{irr}

Como em [1], D_V^{irr} é calculado através da equação (22):

$$D_V^{\text{irr}} = \frac{8}{3\pi^2} D_V^{(M)} \cdot \tau \cdot \Omega_S \cdot F \quad (22)$$

onde F é a taxa de fissão. A tabela 1 apresenta o cálculo de D_V^{irr}/F com a suposição de que $D_V^{(M)} = 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{sec}$.

6. CÁLCULO DO VOLUME ω PARA $\text{ThO}_2\text{-5\%UO}_2$

$\omega_{\text{ThO}_2 - 5\% \text{UO}_2}$ é calculado através da seguinte relação:

$$\omega_{\text{ThO}_2 - 5\% \text{UO}_2} = \frac{\Omega_S^{\text{ThO}_2 - 5\% \text{UO}_2} \cdot \omega_{\text{UO}_2}}{\Omega_S^{\text{UO}_2}} \quad (23)$$

Conforme [1]:

$$\omega_{\text{UO}_2} = 5 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^3$$

$$\Omega_S^{\text{UO}_2} = 10^{-15} \text{ cm}^3$$

Então:

$$\omega_{\text{ThO}_2 - 5\% \text{UO}_2} = 2 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^3 \quad (24)$$

(Conf. tabela 1, $\Omega_S^{\text{ThO}_2 - 5\% \text{UO}_2} = 4 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^3$, $750^\circ\text{C} \leq \bar{T} \leq 1500^\circ\text{C}$).

7. COEFICIENTES DE DIFUSÃO

Aqui se encontra o ponto mais delicado do problema. O coeficiente de difusão é o parâmetro mais importante da tabela 2 para a determinação do Diagrama de Arrhenius da taxa de encolhimento de poros. A posição das regiões de temperatura depende fortemente do coeficiente de difusão e estas, por sua vez, têm marcante influência no comportamento do combustível no reator. A figura 1 apresenta os coeficientes de difusão encontrados na literatura. Para o coeficiente de difusão do Th em ThO_2 encontram-se dois valores completamente diferentes. Segundo Matzke [3] o menor coeficiente de difusão é o mais próximo da realidade. Foram feitas análises de três coeficientes de difusão:

- média global de todos os coeficientes da figura 1, com excessão daquele rejeitado por Matzke:

$$\bar{D} = 984 \cdot e^{-140000/RT}$$

$$\bar{D}_v^{\text{th}} = 1367 \cdot e^{-70000/RT}$$

- média ponderada entre os coeficientes de difusão do Th e U em ThO_2 (tomando aquele aceito por Matzke):

$$\left. \begin{aligned} {}_1D &= 1,30 \times 10^{-7} \cdot e^{-5,89 \times 10^4/RT} \\ {}_1D_v^{\text{th}} &= 1,79 \times 10^{-7} \cdot e^{-2,95 \times 10^4/RT} \end{aligned} \right\} T \leq 900^\circ\text{C}$$

$$\left. \begin{aligned} {}_2D &= 1,07 \times 10^{-5} \cdot e^{-6,95 \times 10^4/RT} \\ {}_2D_v^{\text{th}} &= 1,49 \times 10^{-5} \cdot e^{-3,48 \times 10^4/RT} \end{aligned} \right\} T > 900^\circ\text{C}$$

- média ponderada entre os coeficientes de difusão de Th e U em ThO_2 (tomando o valor rejeitado por Matzke):

$$R^D = 4 \times 10^{-8} \cdot e^{-27000/RT}$$

$$R_{v}^{D^{th}} = 3,56 \times 10^{-8} \cdot e^{-13500/RT}$$

O objetivo é testar a sensibilidade do Diagrama de Arrhenius frente a estas incertezas. A figura 1 apresenta também os coeficientes acima.

8. DIAGRAMA DE ARREHNIUS PARA A TAXA DE ENCOLHIMENTO DE POROS NO CASO (Th-5%U)O₂ - (Figura 2)

Com os coeficientes de difusão propostos na seção anterior e os dados da tabela 2 foi calculada a taxa de encolhimento de poros conforme o modelo Aßmann - Stehle [1]. Para os valores de γ e C_s usou-se os correspondentes do UO₂. O diagrama do UO₂ está também apresentado para comparação. Para a faixa de temperatura $636^{\circ}\text{C} \leq T \leq 1150^{\circ}\text{C}$, os valores para os dois primeiros coeficientes propostos estão na mesma ordem, de grandeza que os correspondentes ao UO₂ (esta faixa corresponde à região de temperatura III para os três casos acima [1,6]). Porém, com coeficiente rejeitado por Matzke, os valores já são bem maiores nesta faixa de temperatura e já corresponde a região IV [1,6].

A região de temperatura III corresponde à faixa dominante nas varetas-UO₂ padrões da KWU para reatores LWR; resta saber se o mesmo será verdade para as varetas-(Th-5%U)O₂. Esta questão só poderá ser respondida depois de avaliações a serem realizadas com o código CARG. Porém os valores seguintes indicam que varetas-(Th-5%U)O₂ devem trabalhar à um nível de temperatura inferior às varetas-UO₂:

- melhor condutividade térmica do (Th-5%U)O₂ em comparação com o UO₂;
- menor grau de liberação de gás de fissão das varetas (Th-5%U)O₂ em comparação com as varetas-UO₂ [5];
- migração de urânio para a periferia da vareta [9].

Assim, é de se esperar que a faixa de temperatura acima seja no mínimo superior ou igual àquela na qual as varetas-(Th-5%U)O₂

irão operar em reatores LWR. Portanto, se tomarmos esta faixa para analisarmos o comportamento dimensional das pastilhas a base de $(Th-5\%U)O_2$ estaremos calculando uma taxa de densificação pelo menos maior do que elas deveriam apresentar no reator.

REFERÊNCIAS

- [1] ASSMANN, H. e STEHLE, H. Thermal and In-reactor Densification of UO_2 : Mechanisms and Experimental Results. Nuclear Engineering and Design, England, 48 (1):49-67, Jun, 1978.
- [2] RONCHI, C. The Nature of Surface Fission Tracks in UO_2 . Journal of Applied Physics, USA, 44 (8):3575-3585, Aug. 1973.
- [3] MATZKE, H. Lattice Defects and Irradiation Damage in ThO_2 and $(U,Pu)O_2$. In: 5th CONF. ON PLUTONIUM AND OTHER ACTINIDES. Baden-Baden, North-Holland/Amer Elsevier, 1976, V.1, p. 815
- [4] SABIONI, A.C.S.; PINTO, L.C.M e RIBEIRO, A.P.R Dados de Óxidos Mistos de Tória-Urânio para Adaptação do Código CARO. Belo Horizonte, CDTN, 1980 (DETR.PD 098/80)
- [5] RAND, M.H. Thermochemical Properties. In: THORIUM PHYSICO CHEMICAL PROPERTIES OF ITS COUPOUNDS AND ALLOYS. IAEA, 1975, Special Issue nº 5, p-7
- [6] LAMEIRAS, F.S. Modelo de Densificação do Combustível de Assmann-Stehle. Belo Horizonte, CDTN, 1980 (Nota Técnica DETR.PD 109/80)
- [7] BLANK, H. Phys. Status Sol. 10: 465-78, 1972
- [8] BLANK, H. e MATZKE, H. Rad. Effects. 17:57-64, 1973
- [9] REICHARDT, K e LAMEIRAS, F.S Ergebnisse der Bestrahlungsversuche zur Schwerwasser - Thorium, Brüterstudie. (Interner Bericht KFA-ZBB-IB-1/80).

TABELA 1
CÁLCULO DE D_{irr} PARA DIVERSAS TEMPERATURAS

T [°C]	K [J/scm°C]	Cp* [J/g°C]	k [cm ² /s] x10 ¹⁰	τ [s] x10 ¹¹	To [°C]	t ² [cm ²] x10 ¹³	Ωs [cm ³] x10 ¹⁶	D _v ^{irr} /F [cm ⁵] x10 ³¹	λ [cm] x10 ⁴
25	0,7925	0,2344	33,64	-	842	-	-	-	-
100	0,3765	0,2493	15,03	-	1773	-	-	-	-
250	0,1836	0,2682	6,81	0,11	3636	5,24	0,37	0,01	2,09
500	0,0991	0,2841	3,47	0,73	6736	12,44	2,94	0,58	7,09
750	0,0678	0,2955	2,28	1,47	9845	12,52	3,50	1,39	8,93
1000	0,0516	0,3055	1,68	2,19	12936	11,76	3,88	2,30	9,89
1250	0,0416	0,3150	1,31	3,51	16046	10,94	3,82	3,62	10,48
1500	0,0349	0,3241	1,07	4,97	19126	10,24	3,71	4,98	10,88
1750	0,0300	0,3331	0,90	6,92	22250	9,67	3,60	6,73	11,17
2000	0,0263	0,3423	0,77	9,65	25380	9,21	3,49	9,10	11,38

* Werte von Cp aus [4] genommen.

TABELA 2

DADOS DE ENTRADA NECESSÁRIOS PARA A UTILIZAÇÃO DO MODELO DE
DENSIFICAÇÃO ABMANN-STEHLÉ

Propriedade	Unidade	UO ₂	ThO ₂ -5%UO ₂	Observações (p/ThO ₂ -5%UO ₂)
D_v^{th}	cm ² /sec	$0,125e^{-\frac{53000}{RT}}$	veja seção 7	[4], [5]
D	cm ² /sec	$0,09e^{-\frac{106000}{RT}}$	veja seção 7	[4], [5]
D_v^{irr}	cm ² /sec	$10^{-30} \cdot F$	$10^{-31} \cdot F$	Valor calculado
g	l	100	100	[1]
γ	Jcm ⁻²	6×10^{-5}	-	Nada encontrado
Ω	cm ³	$4,1 \times 10^{-23}$	$4,37 \times 10^{-23}$	[4]
a	cm	$5,47 \times 10^{-8}$	$5,59 \times 10^{-8}$	[4]
λ	cm	6×10^{-4}	9×10^{-4}	Valor calculado
ω	cm ³	5×10^{-19}	2×10^{-19}	Valor calculado
C_s	l	0,002	-	Nada encontrado
S_M	%/Gwd/tonM	$1,1 \times 10^{-4}$	$1,6 \times 10^{-3}$	[4]

D_v^{th} - coeficiente térmico de difusão de lacunas

D - coeficiente de auto-difusão

D_v^{irr} - coeficiente de difusão de lacunas induzido pela irradiação

g - parâmetro numérico

γ - tensão superficial

Ω - volume de uma lacuna

a - parâmetro de rede

λ - comprimento do traço de fissão

ω - volume de uma molécula no sólido

C_s - concentração de saturação de lacunas

S_M - constante de inchamento da matriz combustível

DETR.PD-079/79

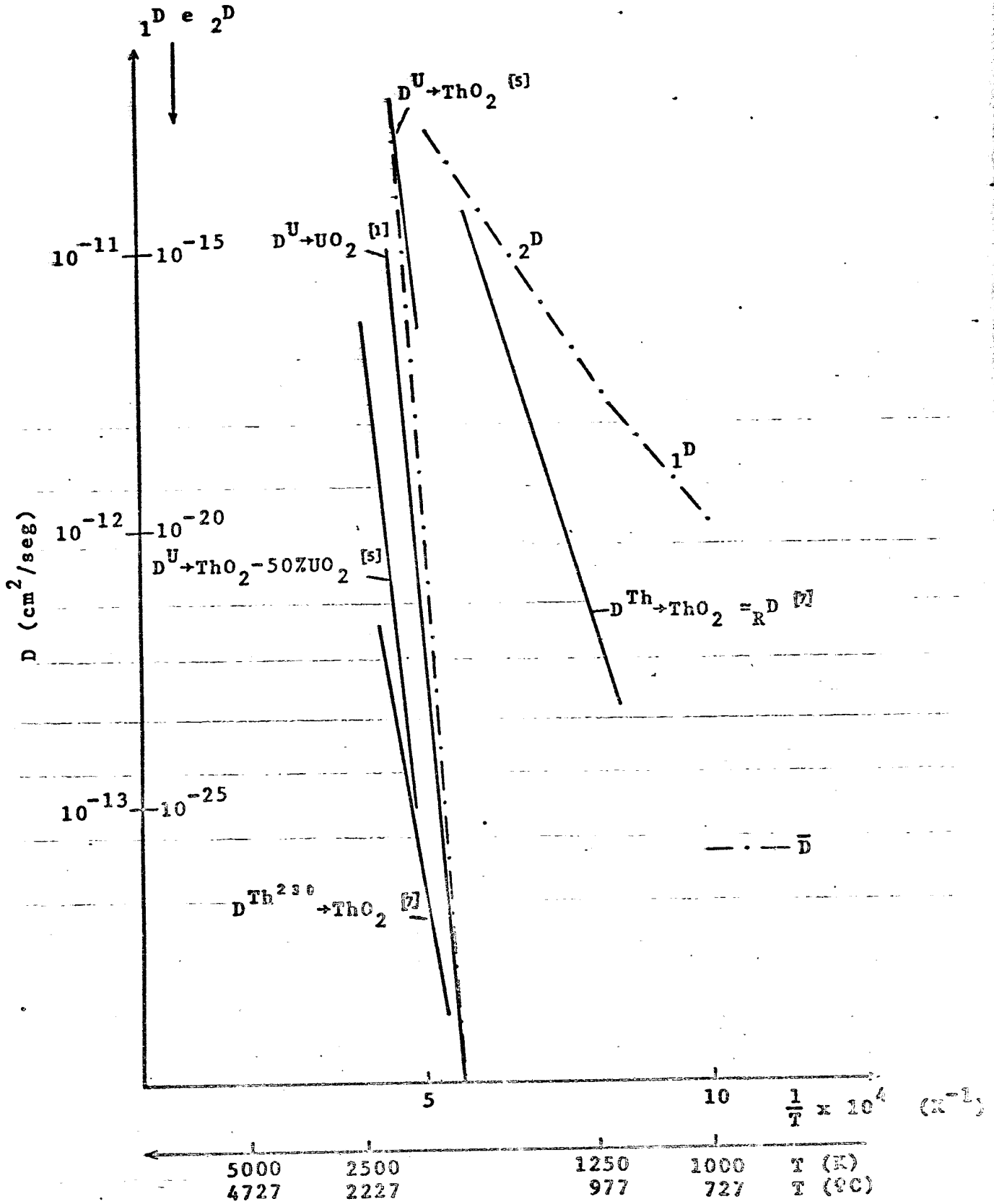


FIGURA 1: Coeficientes de Difusão

DETR.PD-073/79

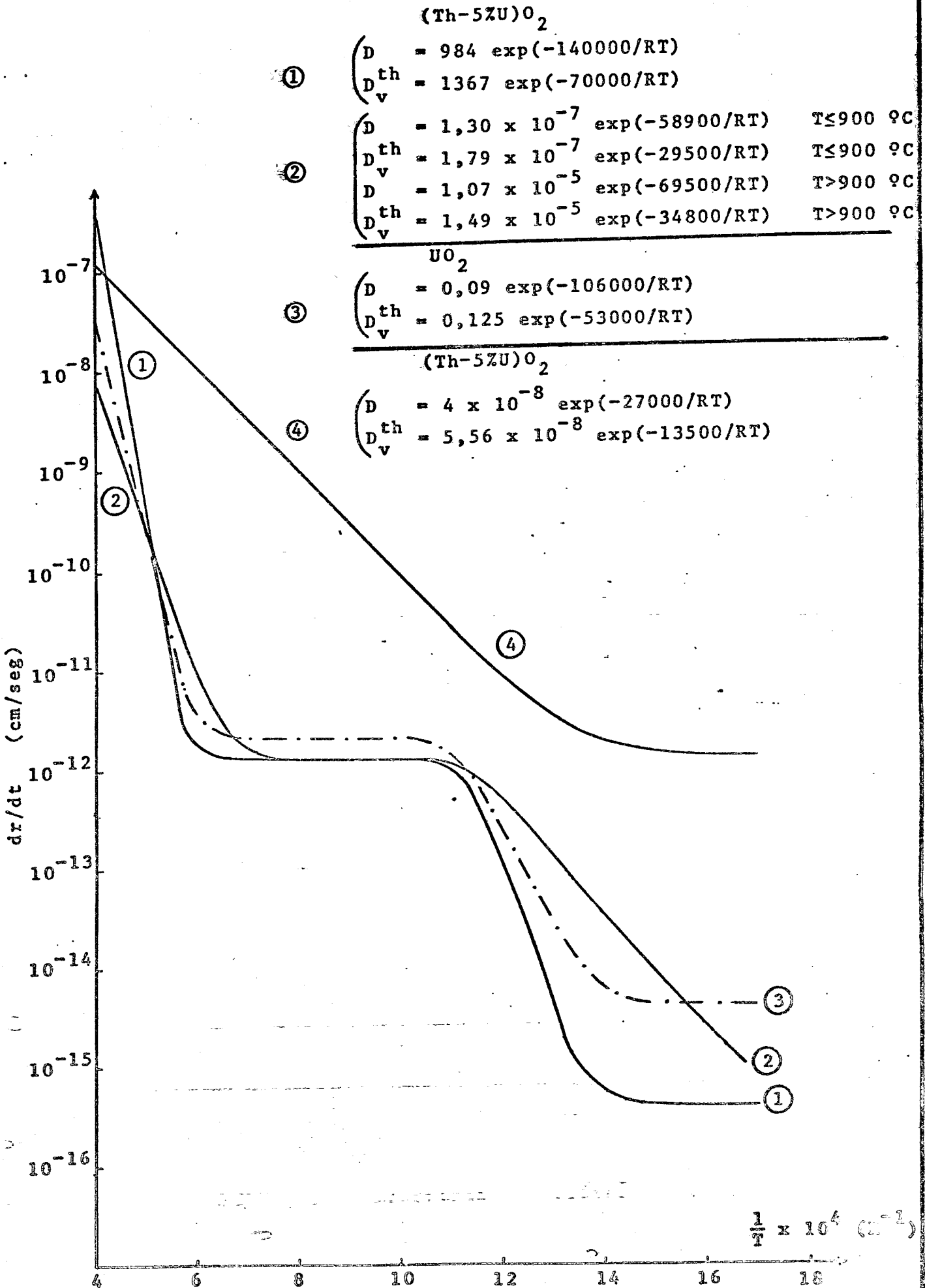


FIGURA 2: Diagrama de Arrhenius para o (Th,5%U)O₂ e UO₂.