

PEMODELAN PERUBAHAN KONDUKTIVITAS PANAS PELAT TIPIS BAHAN-BAKAR DISPERSI U-Mo / Al SELAMA IRADIASI DALAM REAKTOR

Suwardi

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir BATAN
Kawasan Puspipstek Serpong, Tangerang Selatan, 15314

suwardi@batan.go.id

(Naskah diterima : 21-04-2011, disetujui : 19-05-2011)

ABSTRAK

PEMODELAN PERUBAHAN KONDUKTIVITAS PANAS PELAT TIPIS BAHAN-BAKAR DISPERSI U-Mo / Al SELAMA DIIRADIASI DALAM REAKTOR. Perubahan konduktivitas termal sistem dispersi padat-padat U-Mo / Al selama diiradiasi diakibatkan oleh perubahan, timbul-berkembang-susut, pori dalam partikel paduan dan pori matriks oleh pembentukan lapisan reaksi antarfasa serta perubahan temperatur. Model memperhitungkan perpindahan panas arah ketebalan pelat dan mengabaikan perpindahan arah lebar maupun panjang pelat. Model menggunakan parameter struktur, rapat dan dimensi partikel maupun rapat dan dimensi pori pada partikel, konduktivitas bahan penyusun, serta variabel temperatur. Sesuai dengan pengamatan mikrofografi, distribusi spasial subsistem disperse dianggap homogen-merata. Konduktivitas panas menyeluruh dimodelkan sebagai kebalikan dari kombinasi tahanan parallel dan serial antara sub-sistem disperse dan matriks dengan masing-masing sub-sistem terdiri dari 2 jenis struktur dispersi. Model dibandingkan dengan data pengukuran konduktivitas panas pelat pra dan pasca iradiasi, menunjukkan kesesuaian yang baik.

Kata kunci : penghantaran panas, komposit matriks logam, pori, gelembung, dispersi.

ABSTRACT

THERMAL CONDUCTIVITY MODELING OF DISPERSIVE FUEL U-Mo/Al PLATE DURING IN-REACTOR SERVICE. Changes in thermal conductivity of solid-solid dispersion system of U-Mo / Al due to changes caused by growing-shrinkage of pores in the alloy particles and the matrix pore by interface reaction layer formation and temperature. Model takes into account the heat transfer plate thickness direction and ignore the displacement direction of the width and length of the plate. Model uses structural parameters, as well as the particle dimensions and the dimensions of pores in the particles, the conductivity of the constituent materials, as well as variable temperature. In accordance with the micro-graphical observations, the spatial distribution of subsystems are considered homogeneous. Overall thermal conductivity is modeled as the inverse of a combination of parallel and serial resistance between sub-systems and the dispersion matrix with each sub-system consists of two types of dispersion structures. Model compared with measured thermal conductivity data both pre- and post-irradiation, indicating a good fit.

Key words: thermal conductivity, metal matrix composites, pores, bubble, dispersion.

PENDAHULUAN

Memperbesar angka muat uranium dalam rangka meningkatkan nilai ekonomi elemen bakar menyangkut masalah kinerja termal dan mekanikal. Sekitar 10 tahun lalu negara maju telah memulai pengembangan bahan bakar U-Mo untuk meningkatkan densitas hingga sangat tinggi diatas yang dapat dicapai bahan bakar U_3Si_2 yaitu 5.5 gU/ml^[1-3]. Dalam program lima tahunan yang sedang berjalan saat ini, PTBN meneliti pembuatan serbuk dan pelat bahan bakar berbasis U-Mo. Dari teori dan eksperimen bahan bakar disperse paduan logam U ini mengalami penurunan konduktivitas panas jauh lebih besar daripada bahan bakar jenis senyawa U karena reaktivitas dengan Al jauh lebih besar^[4-6]. Maka analisis keselamatan yang diperlukan untuk mendapatkan ijin pemanfaatan perlu memperhitungkan penurunan ubahan besar konduktivitas ini. Maka dalam makalah ini dibahas kinerja termal yang difokuskan pada konduktivitas bahan bakar dispersi itu apabila angkamuat diubah. Dalam reaktor bahan bakar mengalami pengembangan yang terutama disebabkan oleh gelembung gas hasil belah yang terbentuk dalam matrik partikel paduan U-Mo. Pengembangan partikel ini menurunkan konduktivitas termal partikel dan konduktivitas bahan dispersi^[5]. Analisis keselamatan pemakaian bahan bakar memerlukan penentuan temperatur dengan teliti mengingat sifat-sifat fisis dan termodinamika bervariasi dengan temperatur, kemudian perubahan mekanikal tergantung dengan suhu. Untuk ketelitian itu diperlukan prediksi konduktivitas termal sebagai fungsi dari angkamuat dan derajat bakar serta parameter temperatur operasi.

Model yang digunakan dalam prediksi ini merupakan modifikasi dari bahan bakar dispersoid U_3Si_2/Al ^[7-8] dengan menghitung diameter penampang partikel ekuivalen yang dikoreksi oleh ketebalan yang tidak homogen

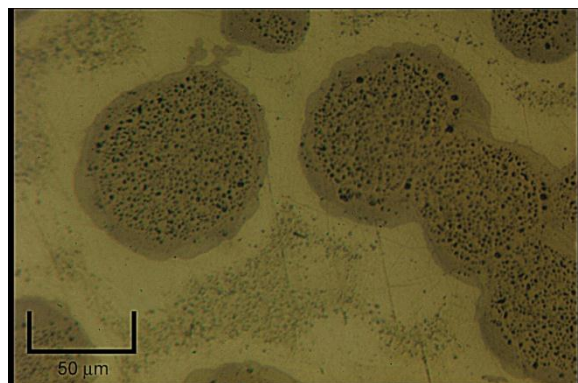
serta suku polinomial lengkap. Sebagai pembanding digunakan data eksperimen^[2,8].

METODA

Model didasarkan pada asumsi berikut :

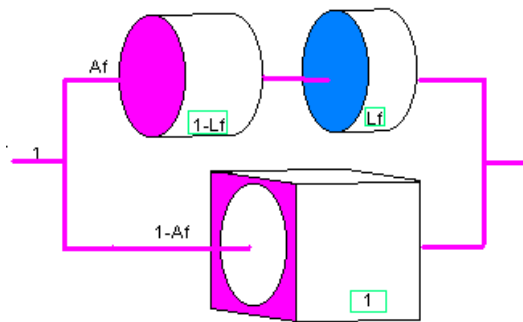
- perpindahan panas arah memanjang dan melebar dapat diabaikan, karena pelat amat tipis.
- fasa dispers berupa partikel berbentuk bola
- partikel disperse bersifat relatif kaku terhadap fasa kontinu
- fasa kontinu bersifat elastis terhadap fasa disperse,
- diameter partikel relatif seragam dapat dilukiskan dengan diameter rerata
- secara termal bahan bersifat isotrop

Model didasarkan pada fenomena perpindahan panas konduksi dan radiasi pada pori, konduktivitas masing-masing bahan (matrik logam dan dispersan keramik/oksida padat serta dispersan gas dalam setiap partikel keramik / oksida) adalah sistem dispersi partikel padat pada matrik padat dan subsistem dispersi gas dalam matrik padat volume satuan kubus dengan satu partikel disperse pada pusat volume. Tahanan panas paralel antara matrik dan komposit matrik-partikel matrik komposit berupa tahanan serial, demikian pula dengan subsistem.

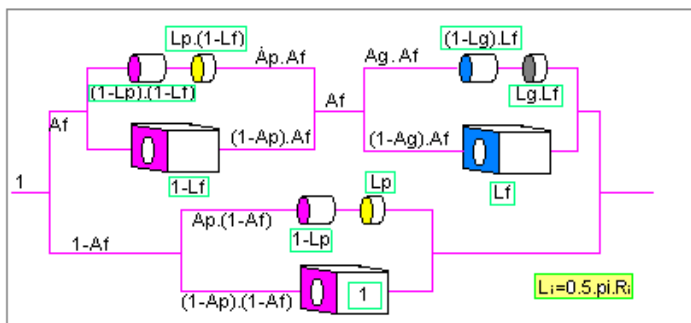


Gambar-1. Tipe dispersoid U-Mo dalam Al setelah diradiasi^[3]

Gambar 1. menyajikan model struktur dasar sistem disperse bola gas dalam matriks padat U-Mo. terlihat butir gelembung gas fisi tersebar dalam butir partikel U-Mo, serta fasa antar muka partikel U-Mo dan matriks Al morfologi gelembung gas dalam U-Mo pengkayaan rendah teriradiasi hingga kerapatan pembelahan $5.10^{27} /m^3$, menurut Hoffman dkk [3] pada pembesaran 500 (kiri) Dispersi paduan U-Mo dalam Al mirip dengan gelembung gas itu. Konduksi pada arah utama difikirkan sebagai penghantar bentuk silinder jejari R dengan 2 bahan tersusun seri dengan fraksi panjang efektif bola dalam silinder adalah $PI = 0.5.\pi.R$. Konduktansi partikel terdispersi dengan elemen volume seperti itu dianalogikan dengan hantaran dalam untai seperti Gambar-2berikut :



Gambar-2. Diagram model konduktivitas bahan dispersi U-Mo (biru) dalam matriks aluminium (merah jambu). L dan bilangan dalam kotak adalah fraksi ketebalan setara, sedang A fraksi luas tampang.



Gambar-3. Diagram model konduktivitas bahan bakar dispers. Dispers

paduan U-Mo mengandung gelembung gas, sedangkan matriks aluminium mengandung pori. Huruf f, g, p sesudah A (fraksi luas) dan L (fraksi ketebalan) berurutan berarti bahan bakar, gelembung gas, dan pori.

Pada model gambar 2 itu subsistem dispersi gelembung gas hasil fisi dalam matriks bahan bakar dan subsistem dispersi pori fabrikasi dalam matriks aluminium serta sistem dispersi dari subsistem partikel bahan bakar dalam subsistem matriks Al adalah serupa. Maka dengan penjabaran satu subsistem kemudian membuat analogi pada subsistem lain dan sistem keseluruhan dapat dirangkai konduktansi sistem seperti pada gambar 3.

Untuk subsistem dispersi gelembung gas dalam bahan bakar, ketebalan rerata gelembung gas sferik terhadap tampang lingkaran silinder adalah luas lingkaran dibagi diameter. Maka fraksi ketebalan gelembung gas, P_{lg} , dalam satuan volume bahan bakar bersisi l_g dengan satu gelembung gas adalah

$$L_g = 0.5 \cdot \pi \cdot R_g / l_g \tag{1}$$

Fraksi luas tampang silinder yang melewati gelembung gas, A_g :

$$A_g = \pi \cdot (R_g / l_g)^2 \tag{2}$$

Panjang sisi satuan volume alias jarak antar pusat gelembung, l_g , dapat dinyatakan dengan parameter yang lebih mudah diukur yaitu kerapatan gelembung, ρ_g , sebesar 1 gelembung tiap l_g kubik.

$$l_g = \rho_g^{-1/3} \tag{3}$$

Selain dengan itu dapat pula dihubungkan dengan fraksi volume gelembung, F_g :

$$F_g = (4/3) \cdot \pi \cdot R_g^3 / l_g^3 = (4/3) \cdot \pi \cdot R_g^3 \cdot \rho_g \tag{4}$$

Kalau ukuran gelembung tidak seragam maka Rg tersebut adalah nilai reratanya. Pernyataan konduktansi subsistem silinder dengan konfigurasi serial dari bahan bakar bila kf konduktansi termal bahan bakar pejal dan kg konduktansi gelembung adalah

$$1/kS = Lg/kg + (1-Lg)/kf \quad (5)$$

konduktivitas efektif bahan bakar dengan dispersi gelembung, keg, merupakan rangkaian paralel dari silinder (kS) dan bahan kontinu (ks) :

$$keg = Ag.kg + (1-Ag).kS \quad (6)$$

Memasukkan (4) ke (5) akan didapatkan

$$keg/kf = 1 - Ag + Ag.[kg / \{(1-Lg).kg + Lg.kf\}] \quad (7)$$

Penyederhanaan bila $Pl \ll 1$, dan $kg \ll Lg.kf$, seperti untuk sistem dispersi pori dalam logam Al

$$keg/kf = 1 - Ag + Ag.(kg / Lg.kf) \quad (8)$$

Persamaan (7) dan (8) dapat dituliskan pula mengingat (1) dan (2), menggunakan parameter densitas dengan (3) atau dengan parameter Fg mengingat (4) :

Analogi gelembung gas dalam bahan bakar dengan pori dalam Al, untuk persamaan (1) sampai (8), dengan mengganti indeks f menjadi Al untuk aluminium dan g menjadi p untuk pori. Pada subsistem ini penyederhanaan (7) menjadi (8) dapat dipenuhi, sehingga seperti (8) konduktivitas efektif Al mengandung pori adalah :

$$kep/kAl = 1 - Ap + Ap.(kp / Lp.kAl) \quad (9)$$

Dengan pori tertutup atau terisolasi atau orientasi pori tegak lurus arah konduksi panas, maka dengan menggunakan data

porositas sebagai fraksi volume Fp, analogi persamaan-9, adalah :

$$kep/kAl = 1 - \pi (0.75.Fp / \pi)^{2/3} . [1kp / \{kAl.(0.5.\pi (0.75.Fp/\pi)^{1/3})\}] \quad (9a)$$

Apabila pori terbuka dan arah sejajar perpindahan panas, maka digunakan $Lp = 1$, dan fraksi luas tetap $Ap = \pi.(Rp/lp)^2$ dengan Rp jari2 pori terbuka. Data morfologi diperlukan untuk menentukan apakah persamaan (9 atau 9a), atau kombinasi keduanya yang sebaiknya digunakan. Lp-Rx Analogi sistem dengan subsistem akan memberikan persamaan, bila ke konduktivitas sistem dispers :

$$ke/kep = 1 - Af + Af.[keg / \{(1-Plf).keg + Plf.kep\}] \quad (10)$$

Konduktivitas partikel bahan bakar pada persamaan(7) memerlukan informasi kg dan kf, serta informasi morfologi. Nilai kg dalam W/mK disamakan data xenon, yaitu sebagai fungsi suhu mutlak T (K) seperti berikut [Olander 3] :

$$kg = (4.0288 \times 10^{-5}) T^{0.872} \quad (11)$$

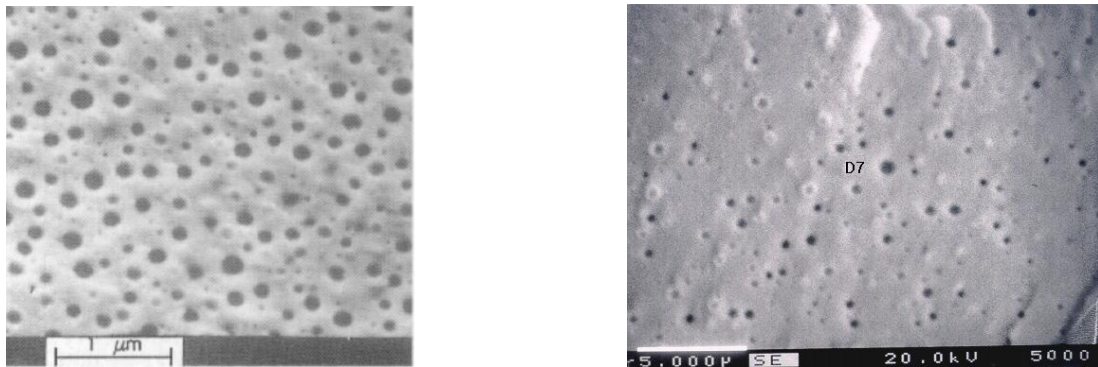
konduktivitas bahan bakar pejal, kf sebagai fungsi temperatur satuan (W/mK). adalah :

$$kf = (0.035 + 225.10^{-4}.T)^{-1} + 83.0.10^{-12}.T^{-3} \quad (12)$$

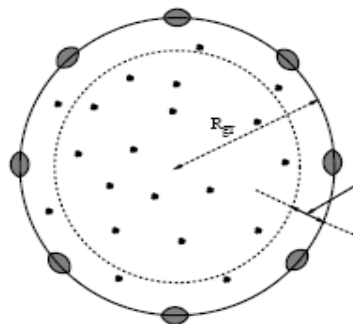
Konduktivitas matriks Al pada persamaan (9) selain keg dari (7) perlu data kp dan morfologi. Konduktivitas panas pori yang terisi gas dinyatakan dalam (W/mK). dengan persamaan (13),

$$kp = kg + \epsilon.\sigma.\pi.R.T^3 \quad (13)$$

di mana kg = konduktivitas panas curah(bulk) gas, ϵ = emisivitas, σ = konstanta Stefan-Boltzmann, dan T = temperatur.



Gambar.4. Citra SEM menyajikan morfologi dan distribusi gelembung-gelembung gas dalam butir U-Mo Citra EPMA pada patahan bahan bakar teriradiasi RETR-2^[3].



Gambar.5. Model butir penyusun partikel bahan bakar U-Mo dg gelembung-gelembung kecil gas bentuk sferis dalam butir dan gelembung-gelembung besar pori oval dan non sferis lain pada batas butir

Dengan k_{ep} dan k_{eg} serta data morfologi termasuk data makro seperti F_f fraksi bahan bakar atau angkamuat, konduktivitas sistem pada persamaan-10 dapat ditentukan.

Pada keadaan bahan bakar masih segar : $F_g = 0$, F_p fraksi pori sama dengan fraksi bawaan fabrikasi.

Selama iradiasi sampai dengan pori Al menutup sempurna, sesuai data eksperimen penutupan pori -dari fraksi pori awal F_{p0} - sebanding dengan pengembangan,

$$F_p = F_{p0} - 0.5.F_g \quad (14a)$$

$$F_p=0, \text{ bila } 5.F_g = F_{p0} \quad (14b)$$

Kalau hubungan densitas fisi (df), laju df , dan pengembangan diketahui, maka riwayat konduktivitas termal dapat ditentukan. Data DART^[1] dapat diaplikasikan untuk hubungan pengembangan sebagai fungsi densitas pembelahan dan temperatur untuk U-Mo pada kondisi tertentu.

Kondisi kritis morfologi akan terjadi yaitu interkoneksi partikel disperse bila $l_g = 2 R_g$, $l_p=2R_p$, atau $l_f=r_f$. Pada kondisi itu secara teoritis, fraksi linear, fraksi luas dan fraksi volume menurut persamaan-persamaan 1,2 dan 4. untuk sistim dan subsistim-i adalah

$$P_{li} = P_{ci} = 0.25. \pi \sim 0.785 \quad (14a) \quad (15)$$

$$F_i = \pi / 6 \sim 0.524 \quad (14b) \quad (16)$$

Pada kondisi ini konduktivitas subsistem dalam prediksi ini tidak sama dengan konduktivitas disperse sebagaimana pada acuan [1], tetapi masih lebih besar lagi oleh kontribusi konduktivitas 'matriks' yang fraksi volumenya ~ 0.476 .

TATA KERJA

Penyusunan algoritma penyelesaian numerik dari model yang dikembangkan pada bab sebelumnya dalam lingkungan-kerja MathCad. Data yang bukan merupakan variabel dan parameter ditulis sebelum persamaan dituliskan. Fungsi dituliskan sebelum dipanggil atau digunakan sebagai fungsi lain. Satuan dalam SI. Kemudian hasil yang diharapkan baik vektor dan matriks dituliskan beserta visualisasi secara grafis. Lampiran menyajikan algoritma penyelesaian dalam lingkungan Mathcad.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Grafik hubungan antara hasil prediksi pada penelitian ini dan J.Rest^[1] serta data eksperimen disajikan pada Gambar 6 dengan disertai data fraksi pori dan fraksi bahan bakar atau angkamuat. Prediksi dari J.Rest dan penelitian ini memiliki kecenderungan yang sama, yaitu pada Ff dan Fp rendah prediksi memberi nilai dibawah eksperimen. Perbedaan antara keduanya terdapat pada Ff dan Fp tinggi. Perhitungan ini cenderung mendapatkan nilai lebih tinggi dibanding hasil eksperimen sebanding dengan tinggi Fp dan Ff, sedangkan Rest kecenderungannya semakin dekat dengan hasil eksperimen untuk Fp dan Ff tinggi. Selisih global prediksi ini dengan data eksperimen mendekati nol, sedangkan dari J.Rest secara global nilai lebih rendah, Selisih global lebih tinggi

dibanding perhitungan ini. Secara statistik selisih ini berarti.

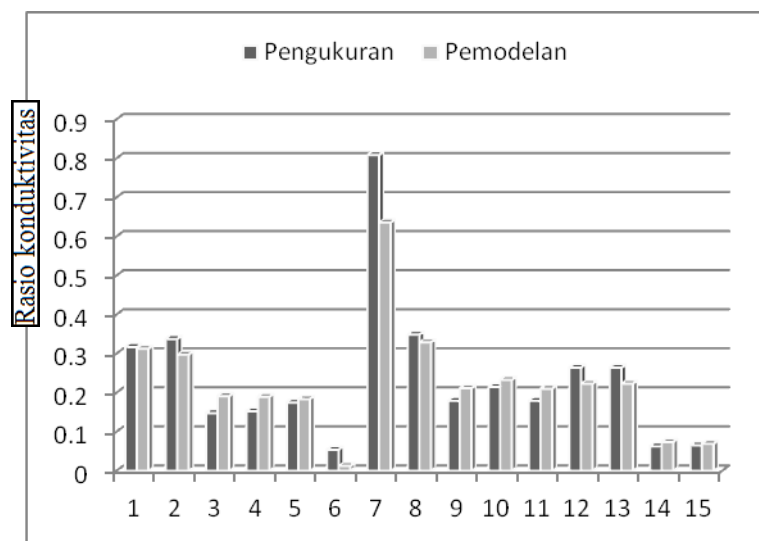
Kurva / garis-selisih ini melewati garis diagonal pada kisaran $Ff \sim 0.3$ dan $Fp \sim 0.1$. Prediksi lebih rendah pada Fp dan Ff rendah atau konduktivitas tinggi dan lebih besar pada Fp dan Ff tinggi, bila dibandingkan hasil pengukuran. Yang pertama mirip dengan J.Rest, tetapi yang kedua disebabkan oleh asumsi dispersi sempurna walau pada fraksi disperse tinggi. Sedangkan J.Rest prediksinya sedikit dibawah pengukuran untuk kasus kedua dikarenakan dia menggunakan ketebalan maksimal dari fasa disperse.

1. Prediksi pengaruh angkamuat dan porositas matriks Al pada bahan bakar segar.

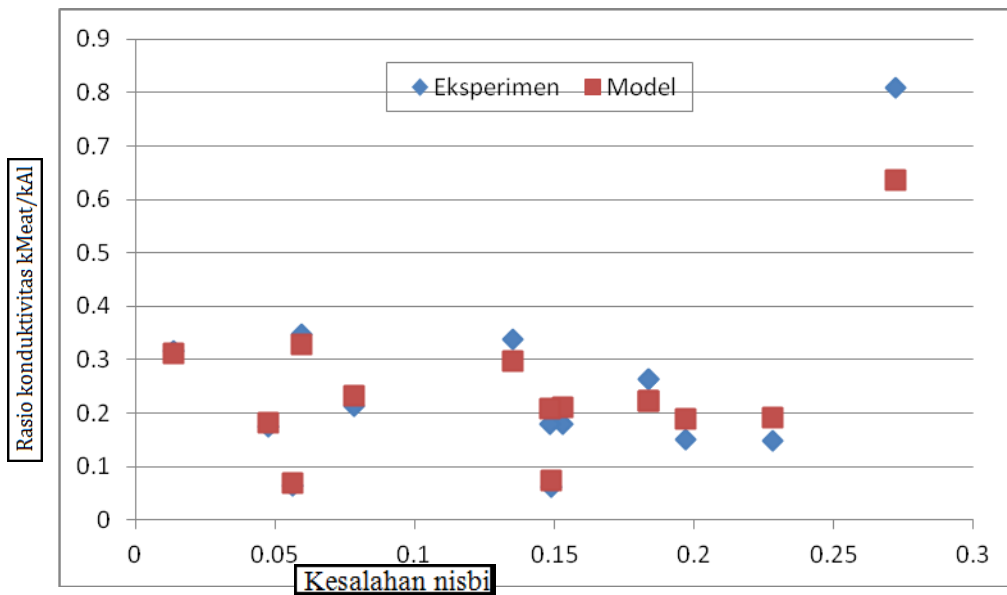
Tabel 1 memuat data eksperimen penentuan konduktivitas termal^[2] serta nilai prediksinya menurut^[1], serta prediksi menurut ini. Gambar-6 menyajikan perbandingan hasil pengukuran, dan prediksi dari Tabel-1. Gambar 7. menampilkan beda antara perhitungan ini dan perhitungan^[1] terhadap hasil pengukuran dengan pengurutan nilai perselisihan/ketidakcocokan dari kecil ke besar sebagai ordinat. Pada angka muat tinggi, hasil prediksi memberikan nilai lebih tinggi daripada hasil pengukuran. Hasil eksperimen yang lebih rendah daripada prediksi yang terjadi pada fraksi bahan bakar tinggi. Hal ini diduga sbb.: mendekati 50% fraksi volume, kemungkinan mendapatkan aglomerasi bahan bakar dalam matriks logam ataupun terdapat logam terkelilingi bahan bakar semakin besar, sedangkan konduktivitas bahan pada struktur ini lebih rendah dibandingkan dengan struktur dengan butir bahan bakar tetap terdispersi seperti dalam pada perhitungan.

Tabel 1. Perbandingan antara hasil pengukuran dan pemodelan rasio konduktivitas komposit/matriks Al

No	Kcm, W/m/K	Ff, %	Fp, %	Kcg/kal	kem/kal	
					Pengukuran	Model
1	70.9	32.5	6.9	0.06607	0.31652	0.3122
2	75.5	34.0	6.9	0.06607	0.33705	0.2969
3	33	39.7	10.5	0.06607	0.14732	0.1908
4	34	38.4	11.6	0.06607	0.15179	0.1890
5	39	38.0	12.4	0.06607	0.17411	0.1828
6	12	49.9	18.4	0.06607	0.05357	0.0121
7	181	13.7	1.9	0.06607	0.80804	0.6353
8	78	32.3	6.0	0.06607	0.34821	0.3286
9	40	39.4	9.2	0.06607	0.17857	0.2108
10	48	37.0	9.3	0.06607	0.21429	0.2325
11	40	39.1	9.5	0.06607	0.17857	0.2097
12	59	46.4	4.0	0.06607	0.26339	0.2225
13	59	46.4	4	0.06607	0.26339	0.2225
14	13.9	46.4	15.4	0.06607	0.06205	0.0729
15	14.5	46.9	15.4	0.06607	0.06473	0.0686



Gambar 6. Rasio konduktivitas daging bahan bakar/konduktivitas matriks hasil pengukuran dan hasil pemodelan dari 15 sampel



Gambar 7. Distribusi perbedaan nisbi antara rasio konduktivitas komposit/matriks hasil pengukuran dan pemodelan

Gambar-6 menampilkan 15 hasil prediksi rasio konduktivitas daging / konduktivitas matriks (Al tanpa butir bahan bakar) disandingkan dengan data pengukuran. Tampak secara umum perbedaan kecil. Perbedaan terbesar didapat pada nilai nisbi yang besar. Kalau nilai ini dikeluarkan dari maka distribusi selisih nisbi dapat ditampilkan dalam Gambar 7. Selisih nisbi tersebar dari 0.5 % terbesar dibawah 25%, rata 10%. Nilai terbesar juga diperoleh pada pengukuran dengan rasio besar yaitu secara fisik pada angka muat besar

SIMPULAN

Pada bahan bakar segar prediksi ini memberikan nilai semakin lebih rendah dibandingkan dengan hasil penentuan eksperimen pada nilai konduktivitas tinggi sebagaimana prediksi. Pada konduktivitas rendah prediksi ini memberikan nilai sedikit lebih tinggi daripada hasil pengukuran. Prediksi^[1] memberikan konduktivitas sedikit

lebih rendah daripada pengukuran pada angkamuat tinggi, berkaitan dengan pemilihan ketebalan maksimal fasa disperse. Untuk daerah angkamuat rendah prediksi DART lebih baik, tetapi untuk zona lain prediksi ini lebih baik.

Konduktivitas bahan segar turun dengan fraksi bawaan, secara grafis mendekati linear. Semakin tinggi pori bawaan, semakin jelas nonlinieritas kurva konduktivitas termal, khususnya terletak pada masa awal iradiasi, berkaitan dengan proses penutupan pori Al, berupa kenaikan mirip parabolik. Pengaruh kedua fraksi volume secara bersamaan telah disajikan dalam kontur dan kurva $k(F_p, F_f)$, ataupun tabel. Untuk bahan bakar dalam reaktor, konduktivitas mula-mula naik dengan pengembangan sampai pori pada matrik Al tertutup oleh himpitan partikel yang mengembang, kemudian turun oleh naiknya fraksi volume gelembung gas maupun partikel bahan bakar.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. REST, J.(1995).The DART Dispersion Analysis Research Tool: A Mechanistic Model for Predicting Fission-Product-Induced Swelling of Aluminum Dispersion Fuels, ANL-95/93, Illinois,
- [2]. WILLIAMS, R.K., GRAVES, R.S., DOMAGALA, R.F., AND WIENCEK, T.C.,(1988).Thermal Conductivities of U₃Si and U₃Si₂-Al dispersion fuels, in Thermal Conductivity, 19, Plenum Publishing Corp. p. 271.
- [3]. HOFMAN, G.L.,REST, J., BIRTCHEK, R.C., SNELGROVE, J.L. (1990). Correlation of irradiation-induced microstructural changes and fission gas swelling in uranium compounds, Intnat. Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Newport Rhode Island, USA.
- [4]. OLANDER, D.R. (1976).Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements, U.S. Dept. of Energy Publication, TID-26711-P1,
- [5]. LOEB,A.L.,(1954). Thermal Conductivity:VII, A Theory of Thermal Conductivity of Porous Materials, J. Am. Ceram. Soc. 37, 96
- [6]. KAMKPF H.,AND KARSTEN, G.(1970),Effects of Different Types of Void Volumes as the Radial Temperature Distribution of Fuel Pins, J. Nucl. Technol. 9, 288
- [7]. REYMANN G.A.,AND HAGRAMANN, D.L.,(1978).MATPRO-10: A Handbook of Material Properties for Use in the Analysis of LWR Fuel Rod Behavior, TREE-NUREG-1180.EG&G-Idaho,Inc.. Report,
- [8]. HASTINGS, I.J.,MACEWAN, J.R.,AND BOURQUE,L.R.(1972).Effect of Swelling on Thermal Conductivity and Post-irradiation Densification of U₃Si, J. Amer. Ceram. Soc., 55(5), 240