

## MODELO DE DENSIFICACIÓN DE COMBUSTIBLES NUCLEARES: ANÁLISIS PARAMÉTRICO

### DENSIFICATION MODEL OF NUCLEAR FUELS: A PARAMETRIC ANALYSIS

Mauricio E. Cazado<sup>a,b</sup> y Alicia Denis<sup>a</sup>

<sup>a</sup>*Sección Códigos y Modelos, Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear, CAC, CNEA,  
Av. Gral. Paz 1499, B1650KNA San Martín, Buenos Aires, Argentina. <http://www.cnea.gov.ar>*

<sup>b</sup>*Instituto Sabato, UNSAM/CNEA. <http://www.isabato.edu.ar>*

**Palabras clave:** porosidad, análisis paramétrico, simulación numérica

**Resumen.** La Sección Códigos y Modelos de la Comisión Nacional de Energía Atómica ha desarrollado un modelo de densificación de pastillas combustibles bajo irradiación y por efecto térmico con resultados preliminares alentadores. El modelo se basa en el principio de difusión de defectos puntuales desde distintas fuentes térmicas y de irradiación hacia los defectos cristalinos como dislocaciones, bordes de granos y poros que actúan como sumideros. Su formulación requiere de una gran cantidad de parámetros, como los coeficientes de difusión de las especies involucradas, la distribución inicial de poros de fabricación, los tipos de poros, la temperatura del combustible, entre otros. Algunos de los parámetros seleccionados son variables operacionales, mientras que otros dependen tanto del material como de las condiciones a las que está sometida la pastilla. En este trabajo se presenta un análisis que permite evaluar la respuesta del modelo en distintos escenarios al variar parámetros seleccionados. Además, a partir de datos experimentales obtenidos de la literatura abierta se ajustan dichos parámetros y se observa que 92 % de los experimentos simulados para los casos térmicos y un 67% de los casos con radiación presentan un buen acuerdo. El próximo paso de este trabajo consistirá en incorporar el modelo al código DIONISIO, que ha sido desarrollado íntegramente por este grupo de trabajo.

**Keywords:** porosity, parametric analysis, numeric simulation.

**Abstract.** The Codes and Models Section of the National Atomic Energy Commission has developed a densification model of fuel pellets under irradiation and thermal effect with promising preliminary results. The model is based on the diffusion of point defects from different thermal and irradiation sources to crystal defects such as dislocations, grain boundaries and pores that act as sinks. Its formulation requires a large number of parameters, such as the diffusion coefficients of the species involved, the initial pore distribution, fuel temperature, among others. Some of the selected parameters are operational variables, while others depend on the material and the conditions to which the pellet is subjected. In this paper an analysis is presented that allows to evaluate the response of the model in different conditions when varying selected parameters. In addition, from the experimental data, these parameters are adjusted and it is observed that 92% of the simulated experiments for thermal cases and 67% of cases with radiation present a good agreement. The next step will consist of incorporating the model into the DIONISIO code, which has been entirely developed by this working group.

## 1 INTRODUCCIÓN

La Sección Códigos y Modelos de la CNEA ha desarrollado un código denominado DIONISIO que se compone de un conjunto de modelos destinados a simular el comportamiento de los combustibles nucleares bajo irradiación dentro de un reactor de potencia o de experimentación, tanto en condiciones de operación normal o de accidentes (Soba y Denis, 2008a, b, 2015; Soba et al., 2013, 2014; Lemes, Soba y Denis, 2015). Dentro de las tareas de validación de un código se encuentran la revisión y reformulación de los modelos incluidos. En este sentido, se ha desarrollado un modelo de densificación de pastillas combustibles de  $UO_2$  bajo irradiación y por efecto térmico con resultados preliminares alentadores (Cazado y Denis, 2017, 2018). Este material presenta una estructura granular, y se obtiene por sinterización de un polvo a alta temperatura, lo que deja una cierta proporción de poros de fabricación dentro y fuera de los granos. El modelo tiene en cuenta la generación de defectos puntuales, ya sea de origen térmico como producidos por la irradiación, y su migración desde las fuentes o hacia los sumideros. Las dislocaciones, los bordes de grano y la superficie de los poros pueden emitir vacancias y también actuar como sumideros de vacancias e intersticiales por efecto exclusivo de la temperatura. Un poro se contrae al capturar intersticiales y al liberar vacancias y se expande por la captura de vacancias. La formulación del modelo requiere de una gran cantidad de parámetros, como los coeficientes de difusión de las especies involucradas, la distribución inicial de poros de fabricación, los tipos de poros (intergranulares o intragranulares), la temperatura del combustible, el número de defectos que escapan de una cascada de daño durante la irradiación, el número de vacancias que son emitidas por un poro cuando interactúa con un fragmento de fisión, entre otros. Algunos parámetros son variables operacionales, mientras que otros dependen tanto del material como de las condiciones a las que está sometida la pastilla. Sus valores pueden ser medidos experimentalmente, calculados o estimados, lo que implica que muchos de esos parámetros toman valores en un amplio rango. En este trabajo se presenta un análisis que permite evaluar la respuesta del modelo al variar parámetros seleccionados. La comparación con nuevos resultados experimentales confirma el buen ajuste del modelo.

## 2 PARÁMETROS CRÍTICOS DEL MODELO

El modelo de densificación propuesto (Cazado y Denis, 2017, 2018) contiene una serie de parámetros que presentan valores en un rango considerablemente amplio. Ellos condicionan la respuesta del modelo respecto a las variables de operación (temperatura, tasa de fisión, presión externa) y a las características microestructurales de los combustibles y deben ser definidos como parámetros de entrada para la ejecución del programa. Estos parámetros son:

- I. Coeficiente de autodifusión de uranio en volumen ( $D_U$ ).
- II. Coeficiente de autodifusión de uranio en borde de grano ( $D_{UBG}$ ).
- III. Número de defectos que escapan de una cascada de daño durante la irradiación ( $Y_{vi}$ ).
- IV. Número de vacancias que son emitidas por un poro cuando interactúa con un fragmento de fisión ( $\eta$ )

Estudios experimentales llevados a cabo por Matzke (1983) demostraron que por debajo de una temperatura de 1273 K la autodifusión en  $UO_2$  es independiente de la temperatura y se comporta de manera lineal con la tasa de fisión a la cual una muestra es irradiada. Sin embargo, a medida que la temperatura aumenta por encima de los 1273 K, el coeficiente de autodifusión se acerca a su valor térmico. Es por ello, que el coeficiente de autodifusión en volumen

se representa como la superposición de ambos efectos:

$$D_U = A\dot{F} + D_{U_0} \exp\left(-\frac{E_U}{RT}\right) \quad (1)$$

donde,  $A = 1,2 \times 10^{-39} m^5$  es una constante semi-empírica estimada por [Matzke \(1983, 1987\)](#) (Matzke, 1983, 1987),  $D_{U_0}$  es la constante preexponencial y  $E_U$  la energía de migración de autodifusión de uranio. En la [Tabla 1](#) se muestran algunos de los valores para los parámetros térmicos del coeficiente de autodifusión reportados en la literatura.

Temperatura (K)	$D_{U_0}$ (m <sup>2</sup> /s)	$E_U/R$ (K)	Referencia
-	$2 \times 10^{-4}$	64200	( <a href="#">Veshchunov y Shestak, 2009</a> )
-	$6,5 \times 10^{-5}$	65000	( <a href="#">Matzke, 1990</a> )
1548 - 1923	$5,4 \times 10^{-9}$	42800	( <a href="#">Marin and Contamin, 1969</a> ) <sup>1</sup>
1750 - 1993	$4,2 \times 10^{-11}$	34700	( <a href="#">Alcock, C. B. et al., 1966</a> )

Tabla 1 – Parámetros térmicos del coeficiente de autodifusión de uranio en UO<sub>2</sub>

En el proceso de densificación de poros intergranulares actúa el mecanismo de difusión por borde de grano, cuyo efecto es mayor que el de la difusión en volumen. El coeficiente de difusión en borde de grano se representa utilizando una expresión de Arrhenius del tipo:

$$D_{UGB} = D_{UGB_0} \exp\left(-\frac{E_{UGB}}{RT}\right) \quad (2)$$

En la [Tabla 2](#) se encuentran los valores para los parámetros de la Ec. (2), los cuales se obtuvieron reajustando los datos experimentales informados en la literatura ([Alcock, C. B. et al., 1966](#); [Yajima, Furuya y Hirai, 1966](#); [Reynolds y Burton, 1979](#)).

Temperatura (K)	$D_{UGB_0}$ (m <sup>2</sup> /s)	$E_{UGB}/R$ (K)	Recalculado de
1523 - 1973	$1.5 \times 10^{-6}$	28900	( <a href="#">Reynolds and Burton, 1979</a> )
1750 - 1923	$6.14 \times 10^{-6}$	35400	( <a href="#">Alcock, C. B. et al., 1966</a> )
2173 - 2423	$3.18 \times 10^{-15}/w$	22900	( <a href="#">Yajima, Furuya and Hirai, 1966</a> ) <sup>2</sup>

Tabla 2 – Parámetros del coeficiente de autodifusión en borde de grano en UO<sub>2</sub>

[Fisher \(1951\)](#) estimó que la relación entre los coeficientes de difusión en borde de grano y en volumen,  $D_{GB}/D$ , está entre  $10^5$  y  $10^6$ . Sobre esta base, es razonable también considerar la aproximación  $D_{UBG} \approx D_U \times 10^5$ .

El estudio llevado a cabo en el presente trabajo incluye también el número de defectos que pueden escapar de una cascada de daños ( $Y_{vi}$ ) y el número de vacancias liberadas por un poro después de su interacción con un fragmento de fisión ( $\eta$ ). Diferentes autores informan para ellos valores en un amplio rango sobre la base de resultados experimentales o estimaciones:  $Y_{vi}$  entre  $10^4$  y  $5 \times 10^5$  ([Nakajima y Saito, 1987](#); [Denis y Piotrkowski, 1996](#)) y  $\eta$  con un límite máximo de 600 ([Dollins y Nichols, 1978](#)).

<sup>1</sup> El autor mencionado informa datos experimentales para el coeficiente de autodifusión de uranio en UO<sub>2+x</sub> en función de  $x$ ; para obtener datos para UO<sub>2</sub> se extrapolaron los parámetros para  $x=0$ .

<sup>2</sup> 'w' corresponde al ancho del borde de grano.

## 2.1 Ajuste de los parámetros críticos del modelo

Para ajustar los parámetros enunciados anteriormente se utilizaron datos experimentales de muestras sometidas a recocidos isotérmicos y a irradiación reportados por Brite et al. (1975). Se elige un combustible con una microestructura designada como Tipo 4 ya que en el trabajo citado se dispone de información acerca de la distribución inicial de poros. Estos datos permiten evaluar la calidad del ajuste brindado por el modelo, comparando con ellos sus predicciones de la distribución inicial de poros. La microestructura del combustible Tipo 4 se encuentra detallada en la Tabla 3.

Tipo 4	Mediana en Volumen del radio de poros	Volumen de poros (%)	Radio promedio de grano (m)
Poros con radio <0,5 m	$0,25 \times 10^{-6}$	6,67	$2,5 \times 10^{-6}$
Poros con radio >0,5 m	$1,0 \times 10^{-6}$	0,63	

Tabla 3 – Datos de la microestructura para el combustible usado en el ajuste de parámetros

Los parámetros térmicos de los coeficientes de difusión fueron seleccionados a partir de simulaciones del modelo sin radiación y su comparación con datos experimentales de densificación alcanzada luego de recocidos isotérmicos para temperaturas entre 1473 K y 1973 K. Las medidas se tomaron a distintos tiempos entre 4 y 1500 horas dependiendo de la temperatura del tratamiento térmico.

Se llevaron a cabo simulaciones con distintas combinaciones de coeficientes de difusión, encontrando que los parámetros que mejor ajustan a la serie de datos son:

$$D_U = \begin{cases} 2 \times 10^{-4} \exp\left(\frac{64200}{T}\right) & T < 1500 \text{ K} \\ 5,4 \times 10^{-9} \exp\left(\frac{42800}{T}\right) & T > 1500 \text{ K} \end{cases} \quad (3)$$

$$D_{UBG} = \begin{cases} 20 \exp\left(\frac{64200}{T}\right) & T < 1800 \text{ K} \\ 6,14 \times 10^{-6} \exp\left(\frac{35400}{T}\right) & T > 1800 \text{ K} \end{cases} \quad (4)$$

Los parámetros relacionados con los fenómenos de irradiación ( $Y_{vi}$ ,  $\eta$ ) se seleccionaron a partir de simulaciones realizadas con el modelo de densificación con irradiación y su comparación con datos de densificación medidos en muestras irradiadas alcanzando una temperatura central en la pastilla entre 643 K y 1598 K. Las medidas se tomaron a 446 y 1629 horas aproximadamente.

Las simulaciones realizadas, empleando distintas combinaciones para los parámetros mencionados, revelan que el mejor ajuste de los datos experimentales se obtiene con  $Y_{vi} = 5 \times 10^5$  y  $\eta = 400$ .

## 3 ANÁLISIS PARAMÉTRICO DEL MODELO

La respuesta del modelo a las variaciones en sus parámetros significativos fue probada para luego aplicarlo a la simulación de casos experimentales. Se analizó el modelo térmico y el

modelo con irradiación, ejecutando el código para diferentes valores de las variables de entrada más influyentes: temperatura, radio de grano y distribución inicial del tamaño de poro. El primero claramente afecta la difusión de defectos puntuales hacia y desde los poros, ya que son procesos activados térmicamente. Los dos últimos son parámetros cruciales para describir la cinética de densificación. Además, en todas las simulaciones realizadas se consideró una presión externa igual a 1 atm.

Para llevar a cabo las simulaciones deben hacerse ciertos supuestos sobre la distribución de poros. Dentro de márgenes realistas se postula una porosidad inicial total del 5%, lo cual corresponde a la última etapa de sinterización de las pastillas combustibles de uso comercial. Además, se proponen radios promedios de grano de 5 y 10  $\mu\text{m}$ . Por simplicidad, se suponen distribuciones monomodales y se analizan dos tipos: una puramente intragranular y otra puramente intergranular. La mediana en volumen del radio del poro es un parámetro característico de la distribución en el modelo. Para la mediana se eligen los valores de 0,25 y 0,50  $\mu\text{m}$ . En la [Tabla 4](#) se presentan los parámetros de las microestructuras analizadas, que pueden corresponder tanto a poros intra como intergranulares.

Microestructura	Mediana en Volumen del radio de poros ( $\mu\text{m}$ )	Radio promedio de grano ( $\mu\text{m}$ )
M1	0,25	5
M2	0,25	10
M3	0,50	10

Tabla 4 – Datos de las microestructuras analizadas en el estudio paramétrico

La [Figura 1](#) muestra el cambio relativo de volumen del combustible, debido a la densificación, como función del tiempo para diferentes distribuciones iniciales y temperaturas. Las simulaciones se realizaron suponiendo tratamientos de 200 h de duración bajo condiciones isotérmicas. En general, la densificación es mayor a temperaturas más altas.

La [Figura 1 a\)](#) muestra la densificación alcanzada en materiales con poros intragranulares. Se puede ver que los materiales con un radio de grano más pequeño densifican más rápido. Por ejemplo, el cambio de volumen relativo alcanzado después de 200 horas a 1973 K es de aproximadamente -1,0% para un material con un radio de grano promedio de 5  $\mu\text{m}$ , mientras que es aproximadamente -0,8% si el radio de grano es de 10  $\mu\text{m}$  en promedio. Esto puede deberse a que, a menor tamaño de grano, las vacancias migran desde los poros hacia los bordes de grano en tiempos más cortos, produciendo un aumento en la velocidad de densificación. De forma similar, la [Figura 1 b\)](#) muestra la comparación de un material que contiene solo poros intergranulares. En términos generales, estos poros tienen un efecto más notable sobre la densificación que los intragranulares y, para la temperatura más alta probada y el radio medio de poro más bajo, los poros de fabricación desaparecen por completo después de un tratamiento térmico de aproximadamente 20 horas. La diferencia en el comportamiento entre ambos tipos de poros con respecto a la magnitud de la densificación se puede atribuir al hecho de que para los poros intergranulares actúa el mecanismo de difusión por borde de grano. Si solo están presentes los poros intergranulares, el modelo predice que una modificación en el tamaño del grano tiene un efecto poco significativo sobre la densificación (curvas superpuestas).

Además, se observa en las [Figura 1 a\)](#) y [b\)](#) que un cambio hacia valores más altos en la distribución inicial del tamaño de poro (aumento en el valor de la mediana) retrasa la densificación, ya sea para los poros intra o intergranulares. Esto es consistente con las observaciones experimentales realizadas por [Ross \(1969\)](#).

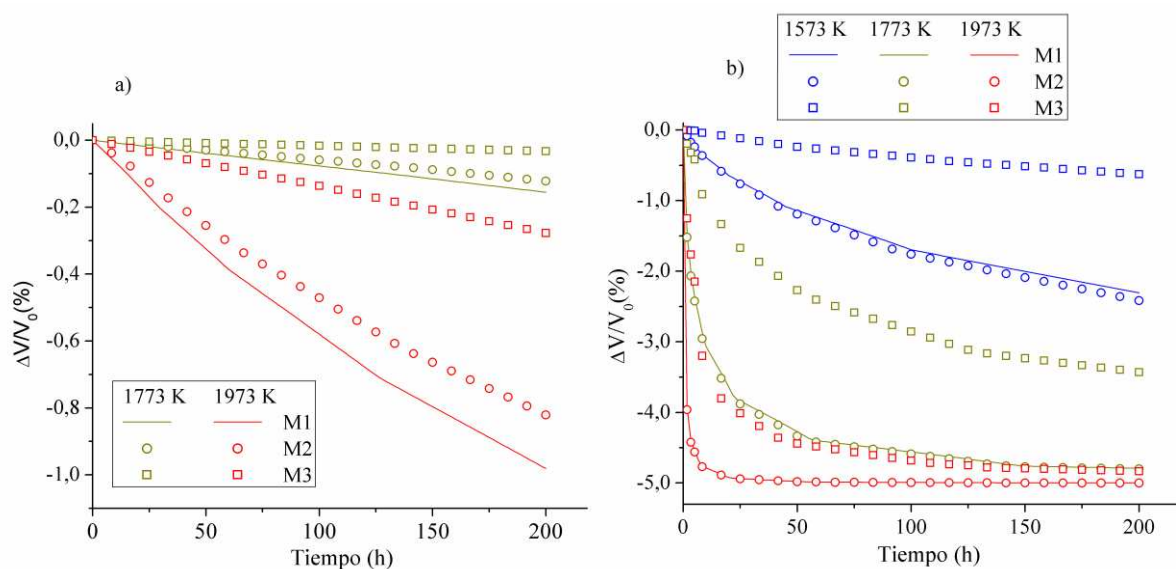


Figura 1 – Cambio relativo de volumen a distintas temperaturas usando el modelo térmico para distribuciones de poros a) intragranulares y b) intergranulares

Para realizar las simulaciones del modelo con irradiación se consideró una tasa de fisión  $F = 10^{19} \text{ fis/s.m}^3$ , temperaturas menores a 1273 K y la trayectoria de un fragmento de fisión  $\lambda = 10^{-6} \text{ m}$ . La cota máxima de temperatura se eligió debido a que en condiciones normales de operación, el valor de tasa de fisión elegido da lugar a una temperatura máxima en el centro de la pastilla de aproximadamente 1273 K de acuerdo con Brite et al., (1975).

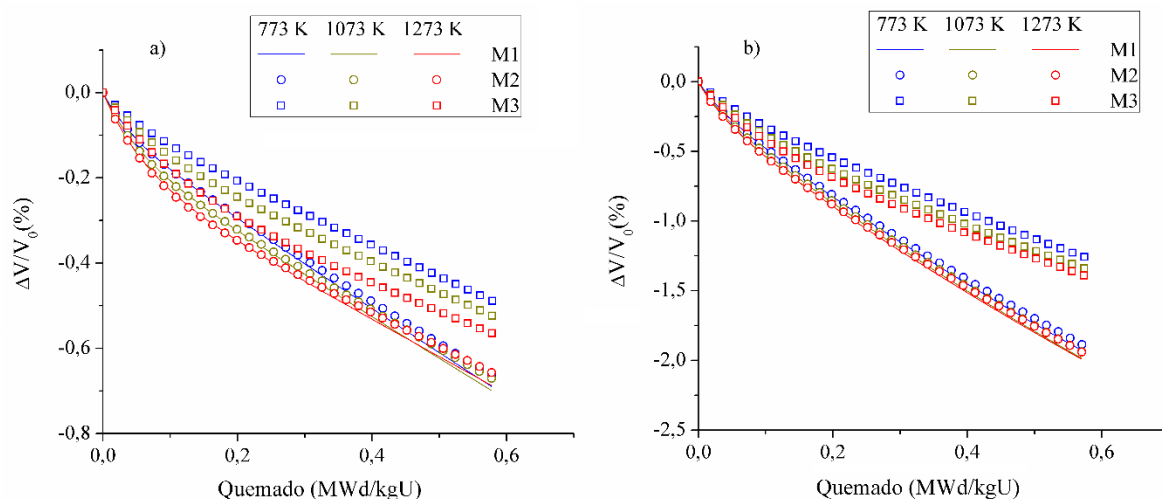


Figura 2 – Cambio relativo de volumen a distintas temperaturas usando el modelo con irradiación para distribuciones de poros a) intragranulares y b) intergranulares

La Figura 2 presenta el cambio relativo de volumen, debido a la densificación de combustibles bajo irradiación, como función del tiempo para diferentes distribuciones y temperaturas. Las simulaciones se realizaron suponiendo tratamientos isotérmicos con irradiación hasta alcanzar un quemado de 0,60 MWd/kgU, aproximadamente.

En las Figura 2 a) y b) se muestran los cambios dimensionales alcanzados en materiales con poros intra e intergranulares, respectivamente. También en este caso, la tendencia general es densificación más rápida a temperaturas más altas. Al igual que lo observado en los casos de recocidos isotérmicos, cuando la distribución de poros se corre hacia valores más altos, la

densificación se hace más lenta. Además, se evidencia que el tamaño de grano no influye significativamente en el cambio de volumen. Esto puede deberse a que en el rango de temperatura analizado, la componente de irradiación del coeficiente de autodifusión en volumen es tal que el camino cuadrático medio es del orden de magnitud del radio del grano,  $\langle x^2 \rangle \approx 4\sqrt{D_V t} \approx R_g$

La diferencia en el comportamiento entre poros intragranulares e intergranulares se debe al efecto de la difusión en borde de grano que da lugar a niveles de densificación más altos para estos últimos. Por ejemplo, para la microestructura señalada como M1, el cambio relativo de volumen logrado luego 0,60 MWD/kgU a 1273 K es 0,7 % si los poros son intragranulares y -2,0 % si son intergranulares.

Tanto en la [Figura 2 a\)](#) como en la [Figura 2 b\)](#) se observa que el efecto de la temperatura es poco relevante en la densificación para distribuciones de poros con mediana de 0,25  $\mu\text{m}$ , independientemente del tamaño de grano, si bien ambos tipos de microestructuras dan lugar a densificaciones muy distintas: alrededor de -0,60 y -1,50 % para poros exclusivamente intra o intergranulares, respectivamente, para un quemado final de 0,50 MWD/kgU. Esto es atribuible al efecto marcadamente mayor de la irradiación frente al de la temperatura, particularmente en el rango involucrado, en el cual el coeficiente de autodifusión es independiente de la temperatura.

## 4 RESULTADOS DE CASOS EXPERIMENTALES

[Freshley et al. \(1975, 1976\)](#) presentan mediciones de densificación llevadas a cabo en pastillas combustibles de  $\text{UO}_2$  con diferentes microestructuras. En el presente trabajo, se adopta la nomenclatura utilizada por [Freshley et al. \(1976\)](#) para identificar las muestras, designando a cada microestructura como un "tipo de combustible". Para hacer comparaciones entre los datos experimentales y las predicciones del modelo, es necesario tener una buena representación de las distribuciones de poros para cada tipo de combustible, lo cual ya fue presentado anteriormente ([Cazado y Denis, 2017](#)).

### 4.1 Resultados para recocidos isotérmicos sin radiación

El modelo de densificación térmico se empleó para simular los experimentos realizados en el Proyecto de Densificación de Combustible EEI/EPRI ([Brite et al., 1975](#)).

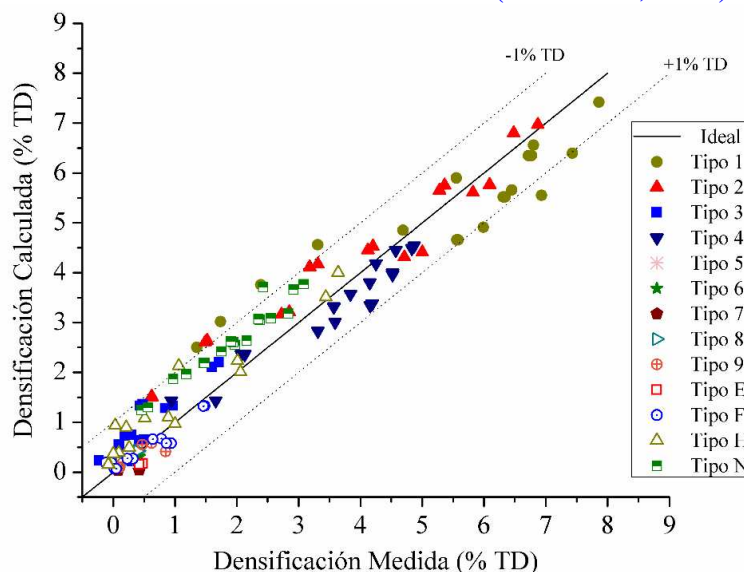


Figura 3 – Comparación entre la densificación medida y calculada alcanzada luego de recocidos isotérmicos ([Brite et al., 1975](#))

La **Figura 3** muestra la comparación entre datos experimentales y predicciones del cambio de densidad, como un porcentaje de la densidad teórica (TD), lograda en tratamientos isotérmicos para temperaturas entre 1773 y 1973 K después de 4, 14 y 48 horas. En términos generales, los resultados obtenidos concuerdan bien con los experimentos y alrededor del 92% de los casos simulados presentaron una desviación absoluta menor al 1% TD respecto de la línea de acuerdo perfecto.

#### 4.2 Resultados para muestras irradiadas

El modelo de densificación propuesto (Cazado y Denis, 2017) se utilizó para simular experimentos bajo irradiación realizados en el Proyecto de Densificación de Combustible EEI / EPRI (Brite et al., 1975). La **Figura 4** muestra la comparación entre datos experimentales y predicciones de los cambios de densidad (% TD) de pastillas combustible irradiados durante 446 y 1600 horas alcanzando temperaturas centrales entre 573 y 1598 K. Aunque se pueden observar algunas desviaciones, los resultados obtenidos están generalmente en buen acuerdo con los valores medidos y alrededor del 67% de los casos simulados presentaron una desviación absoluta de menos del 1% TD desde la línea de acuerdo perfecto. Debe notarse que una pastilla combustible bajo irradiación desarrolla un gradiente de temperatura en función del radio que influye en la velocidad. En las simulaciones realizadas el modelo se resuelve en un único grano promedio con una temperatura uniforme igual a la temperatura central alcanzada por la pastilla. Estas simplificaciones pueden dar lugar a las diferencias observadas.

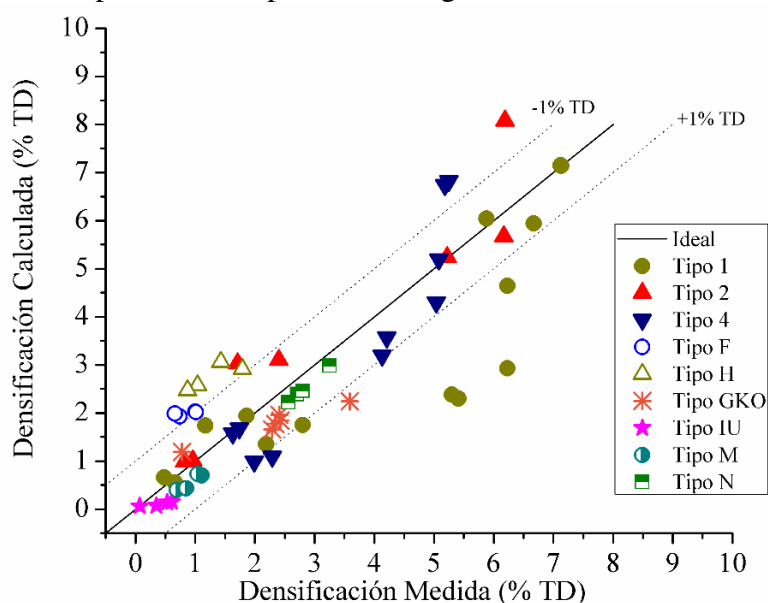


Figura 4 – Comparación entre la densificación medida y calculada alcanzada en muestras irradiadas (Brite et al., 1975).

## 5 CONCLUSIONES

En este trabajo se analizó la influencia de la distribución de poros, temperatura y tamaño de grano en la densificación de combustibles nucleares en condiciones isotérmicas y bajo irradiación. Este estudio ha demostrado que, a mayor temperatura, mayor es la densificación alcanzada y que cuando se tiene distribuciones de tamaños de poros más grandes, los cambios dimensionales son menores. Además, las microestructuras con poros intergranulares presentan valores de densificación más altos que aquellas con poros intragranulares, debido a que en los primeros actúa el mecanismo de difusión en borde de grano. El tamaño de grano no tendría



una influencia significativa en la densificación, excepto en microestructuras con poros intra-granulares y sometidas a tratamientos puramente isotérmicos.

Tanto el modelo térmico como el de irradiación fueron probados usando datos experimentales provistos por el Proyecto EEI/EPRI. En todos los casos, las simulaciones se llevaron a cabo resolviendo las ecuaciones involucradas en un grano de tamaño promedio y en condiciones isotérmicas. Se obtuvo un buen acuerdo entre los resultados calculados y medidos.

El siguiente paso de este trabajo consistirá en incorporar el modelo de densificación como una subrutina del código DIONISIO, que ya contiene un modelo para la formación de burbujas por gases de fisión y su liberación al volumen libre de la barra de combustible. Esto permitirá probar los efectos combinados de densificación e hinchamiento. Además, dado el fuerte gradiente de temperatura que se desarrolla en las pastillas combustibles, es necesario un cálculo local de densificación para obtener predicciones realistas. Esto será posible dentro del marco del código general que proporcionará valores locales adecuados de todos los parámetros físicos significativos

## REFERENCIAS

- Brite, D. W. et al., EEI/EPRI Fuel Densification Project, 1975
- Cazado, M. E. and Denis, A., Modelo de densificación de pastillas combustibles bajo irradiación, *Mecánica Computacional*, XXXV, pp. 1721–1732, 2017.
- Cazado, M. and Denis, A., Model of nuclear fuel pellets densification under irradiation and isothermal conditions: application to UO<sub>2</sub> fuels, *Journal of Nuclear Materials*, accepted for publication, 2018.
- Denis, A. and Piotrkowski, R., Simulation of isothermal gas release, *Journal of Nuclear Materials*, 229, pp. 149–154, 1996.
- Dollins, C. C. and Nichols, F. A., In-pile intragranular densification of oxide fuels, *Journal of Nuclear Materials*, 78(2), pp. 326–335, 1978.
- Fisher, J. C., Calculation of diffusion penetration curves for surface and grain boundary diffusion, *Journal of Applied Physics*, 22(1), pp. 74–77, 1951.
- Freshley, M. D. et al., Irradiation-induced densification of UO<sub>2</sub> pellet fuel, *Journal of Nuclear Materials*, 62(2–3), pp. 138–166, 1976.
- Alcock, C. B., Hawkins, R. J., Hills A. W. D. and McNamara P., A study of cation diffusion in stoichiometric UO<sub>2</sub> using  $\alpha$ -ray spectrometry, in *Proceeding of the symposium thermodynamics with emphasis on nuclear materials and atomic transport in solids*, IAEA, 1966.
- Iltis, X. et al., A new characterization approach for studying relationships between microstructure and creep damage mechanisms of uranium dioxide, *Journal of Nuclear Materials*, 474, pp. 1–7, 2016.
- Lemes, M., Soba, A. and Denis, A., An empirical formulation to describe the evolution of the high burnup structure, *Journal of Nuclear Materials*, 456, pp. 174–181, 2015.
- Marin, J. F. and Contamin, P., Uranium and oxygen self-diffusion in UO<sub>2</sub>, *Journal of Nuclear Materials*, 30(1–2), pp. 16–25, 1969.
- Matzke, H., Radiation enhanced diffusion in UO<sub>2</sub> and (U, Pu)O<sub>2</sub>, *Radiation Effects*, 75(1–4), pp. 317–325, 1983.
- Matzke, H., Atomic transport properties in UO<sub>2</sub> and mixed oxides (U, Pu)O<sub>2</sub>, *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 2*, 83(7), p. 1121, 1987.
- Matzke, H., Atomic mechanisms of mass transport in ceramic nuclear fuel materials, *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions*, 86(8), pp. 1243–1256, 1990.
- Matzke, H., Inoue, T. and Warren, R., The surface energy of UO<sub>2</sub> as determined by hertzian indentation, *Journal of Nuclear Materials*, 91(1), pp. 205–220, 1980.

- Nakajima, T. and Saito, H., A comparison between fission gas release data and FEMAXI-IV code calculations, *Nuclear Engineering and Design*, 101(3), pp. 267–279, 1987.
- Reynolds, G. L. and Burton, B., Grain-boundary diffusion in uranium dioxide: The correlation between sintering and creep and a reinterpretation of creep mechanism, *Journal of Nuclear Materials*, 82(1), pp. 22–25, 1979.
- Ross, A. M., Irradiation behavior of fission-gas bubbles and sintering pores in UO<sub>2</sub>, *Journal of Nuclear Materials*, 30, pp. 134–142, 1969
- Soba, A. et al., A high burnup model developed for the DIONISIO code, *Journal of Nuclear Materials*, 433(1–3), pp. 160–166, 2013.
- Soba, A. et al., Simulation of the behaviour of nuclear fuel under high burnup conditions, *Annals of Nuclear Energy*, 70, pp. 147–156, 2014.
- Soba, A. and Denis, A., Model of fracture for the Zry cladding of nuclear fuel rods included in the code DIONISIO 1.0, *Nuclear Engineering and Design*, 238(12), pp. 3292–3298, 2008a.
- Soba, A. and Denis, A., Simulation with DIONISIO 1.0 of thermal and mechanical pellet-cladding interaction in nuclear fuel rods, *Journal of Nuclear Materials*, 374(1–2), pp. 32–43, 2008b.
- Soba, A. and Denis, A., DIONISIO 2.0: New version of the code for simulating a whole nuclear fuel rod under extended irradiation, *Nuclear Engineering and Design*, 292, pp. 213–221, 2015.
- Veshchunov, M. S. and Shestak, V. E., Model for evolution of crystal defects in UO<sub>2</sub> under irradiation up to high burnups, *Journal of Nuclear Materials*, 384(1), pp. 12–18, 2009.
- White, R. J. and Tucker, M. O., A new fission-gas release model, *Journal of Nuclear Materials*, 118(1), pp. 1–38, 1983.
- Yajima, S., Furuya, H. and Hirai, T., Lattice and grain-boundary diffusion of uranium in UO<sub>2</sub>, *Journal of Nuclear Materials*, 20(2), pp. 162–170, 1966.