

**UNIVERSIDAD NACIONAL DE GENERAL SAN MARTÍN
COMISIÓN NACIONAL DE ENERGÍA ATÓMICA
INSTITUTO DE TECNOLOGÍA
"Prof. Jorge A. Sabato"**

**Modelado del hinchamiento en pastillas de óxidos
combustibles bajo irradiación^(*)**

por Ing. Francisco Rotea

Directores

**Mgs. Ing. Mauricio Exequiel Cazado
Dr. Alejandro Soba**

(*) Tesis para optar al título de *Magíster en Ciencia y Tecnología de Materiales*

República Argentina

2023

Resumen

La Sección Códigos y Modelos de la Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear de la Comisión Nacional de Energía Atómica ha desarrollado íntegramente el código DIONISIO, que permite simular el comportamiento de los combustibles de reactores de potencia y de investigación en condiciones de operación normal y de accidentes. Los modelos que forman parte del código son susceptibles de revisiones y reformulaciones para poder abarcar diversas condiciones experimentales. El trabajo de tesis que se presenta nace de la necesidad de aumentar el rango de validez de la subrutina dedicada al hinchamiento del combustible.

En una pastilla de UO_2 sometida a irradiación se producen múltiples fenómenos físicos y químicos interrelacionados entre sí, que producen cambios considerables en sus propiedades. Uno de estos fenómenos es el hinchamiento, producido a partir de la acumulación de productos de fisión sólidos y gaseosos que son generados durante la irradiación. La expansión volumétrica resultante posee efectos perjudiciales para la vida útil del combustible. Por un lado, este mecanismo facilita el contacto entre la pastilla y la vaina, creando zonas de alta sollicitación mecánica. Por otra parte, se reduce la conductividad térmica del combustible, lo cual implica mayores temperaturas en la pastilla. Además, el fenómeno de hinchamiento por productos gaseosos se encuentra directamente relacionado a la liberación de gases de fisión hacia el volumen libre de la barra combustible, lo cual conlleva nuevamente a efectos negativos, tales como el aumento en la presión interna de la barra y la degradación de la conductividad térmica en el *gap* entre la pastilla y la vaina.

En esta tesis se ha desarrollado un modelo que pretende dar predicciones realistas de los procesos de hinchamiento de una pastilla combustible de UO_2 bajo irradiación, teniendo en cuenta condiciones de alta exigencia, como pueden ser los transitorios rápidos de potencia. El modelo se compone de un módulo dedicado al tratamiento del gas que se encuentra en el interior del grano (intragranular), un módulo dedicado al tratamiento del gas que se encuentra en los bordes de grano (intergranular) y otro que trata el hinchamiento por productos sólidos. Además, como el modelo se encuentra fuertemente relacionado con los modos de crecimiento de grano del combustible, también se han analizado diferentes modelos para simular este fenómeno. A partir del modelo implementado se generó una subrutina dentro del código DIONISIO con la finalidad de hacerla funcionar en forma coordinada con las restantes subrutinas del programa. Con la nueva versión del código se realizaron diversas simulaciones cuyos resultados presentan buen acuerdo cuando se los compara con los datos experimentales disponibles en la literatura.

Palabras claves: DIONISIO, hinchamiento, liberación de gases de fisión, crecimiento de grano.

Abstract

The Codes and Models Section of the Nuclear Fuel Cycle Management of the National Atomic Energy Commission of Argentina has fully developed the DIONISIO code, which makes it possible to simulate the behavior of power and research reactor fuels under normal operating and accident conditions. The models that are part of the code are subject to revisions and reformulations in order to cover different experimental conditions. The present thesis arises from the need to increase the range of validity of the subroutine dedicated to fuel swelling.

In a UO_2 pellet subjected to irradiation, multiple interrelated physical and chemical phenomena occur, which cause considerable changes in its properties. One of these phenomena is swelling, produced by the accumulation of solid and gaseous fission products generated during irradiation. The resulting volumetric expansion has detrimental effects on the operational lifetime of the fuel. On the one hand, this mechanism facilitates contact between the pellet and the cladding, creating areas of high mechanical stresses. On the other hand, the thermal conductivity of the fuel is reduced, which implies higher temperatures in the pellet. Furthermore, the gaseous swelling phenomenon is directly related to the release of fission gases into the free volume of the fuel rod, which again leads to negative effects, such as the increase in the internal pressure of the rod and the degradation of the thermal conductivity in the gap between the pellet and the cladding.

In this thesis, a model capable of giving realistic predictions of the swelling processes of a UO_2 fuel pellet under irradiation has been developed, taking into account highly demanding conditions, such as fast power transients. The model is composed of a module dedicated to the behaviour of the gas inside the grain (intragranular gas), one for the behaviour of the gas at the grain boundaries (intergranular gas) and another one that addresses the swelling by solid products. In addition, as the model has a strong relationship with the fuel grains' growth, different models have also been analyzed to predict this phenomenon. Starting from the developed model, a subroutine was generated within the DIONISIO code in order to couple it with the other subroutines of the program. With the new version of the code, several simulations were carried out, and the results show a good agreement when compared with the experimental data available in the literature.

Keywords: DIONISIO, swelling, fission gas release, grain growth.

Agradecimientos

Al Instituto Sábato y todo su personal docente y no docente, por permitirme formarme en el área de ciencia y tecnología de los materiales. Un especial agradecimiento para su director, Dr. Manuel Iribarren, y para Ana María Kurcin, del Departamento de Alumnos de Posgrado, por toda la ayuda brindada.

A la Comisión Nacional de Energía Atómica y sus autoridades, así como también al Lic. Federico Kaufmann y toda la Gerencia Ciclo de Combustible Nuclear, por poner a disposición todos los recursos necesarios para llevar a cabo este trabajo. Un agradecimiento especial para todos mis compañeros de la Sección Códigos y Modelos que me recibieron al grupo de la mejor manera.

A mis directores de tesis, Mauricio y Alejandro, por introducirme en el modelado computacional. Muchas gracias por su paciencia, su dedicación constante, y por todos los conocimientos transmitidos.

A mis compañeros en la cursada de maestría, en especial Pablo y Ailén, por los momentos compartidos.

A todos mis amigos en Luján, que siempre me acompañaron.

A mi familia, en especial a mi madre, hermanos y sobrinos, por el apoyo incondicional.

Publicaciones y congresos

- Rotea, F., Cazado, M. E., Soba, A. *Avances en el modelado del hinchamiento de pastillas combustibles bajo irradiación*. MECOM 2022 - XXXVIII Congreso Argentino de Mecánica Computacional - 1 al 4 de Noviembre, Bahía Blanca, Argentina (2022). ISSN 2591–3522. <http://venus.ceride.gov.ar/ojs/index.php/mc/article/view/6465>.
- Rotea, F., Cazado, M. E., Soba, A. *Modelado del hinchamiento de pastillas combustibles bajo irradiación*. AATN 2022 - XLVI Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear - 19 al 22 de Diciembre, Ciudad Autónoma de Buenos Aires, Argentina (2022).
- Rotea, F., Cazado, M. E., Soba, A. *A model of fission gas swelling and its relation with solid swelling and grain growth models*. (en preparación).

Índice

Índice de figuras	vii
Índice de tablas	xi
1. Introducción	1
1.1. Barras combustibles	5
1.2. El código DIONISIO	7
1.3. Objetivos de este trabajo	8
Referencias	9
2. Gas intragranular	12
2.1. Modelo del comportamiento del gas intragranular	13
2.1.1. Coeficiente de difusión	21
2.1.2. Tasa de nucleación de burbujas	24
2.1.3. Tasa de producción de gas	27
2.1.4. Tasa de atrapamiento	28
2.1.5. Tasa de re-disolución	29
2.2. Resultados	32
2.2.1. Datos experimentales	32
2.2.2. Comparación con el modelo	33
Referencias	38
3. Gas intergranular	42
3.1. Modelo del comportamiento del gas intergranular	44
3.1.1. Nucleación de las burbujas	46
3.1.2. Crecimiento de las burbujas	46
3.1.3. Coalescencia	49
3.1.4. Liberación de gases de fisión	50
3.1.5. Coeficiente de difusión en borde de grano	54
3.1.6. Micro-fisuras en borde de grano	56
3.2. Resultados	61
3.2.1. Modelo de hinchamiento intergranular	61
3.2.2. Modelo de liberación de gases de fisión	66
Referencias	70

4. Productos sólidos de fisión	73
4.1. Modelo del comportamiento de los productos sólidos	75
Referencias	78
5. Crecimiento de grano	79
5.1. Modelos de crecimiento de grano	80
5.2. Resultados	88
5.2.1. Datos experimentales	88
5.2.2. Resultados con irradiación	89
5.2.3. Resultados sin irradiación	91
Referencias	94
6. Validación en barras combustibles	95
6.1. Descripción general del código DIONISIO	96
6.2. Incorporación de los modelos al código DIONISIO	98
6.3. Experimentos CONTACT	101
6.4. Experimentos RISØ-3	105
Referencias	111
7. Conclusiones	112

Índice de figuras

1. Introducción	1
1.1. Esquema de la geometría de una pastilla combustible.	5
1.2. Esquema de una barra combustible.	6
2. Gas intragranular	12
2.1. Esquema demostrativo de los mecanismos que intervienen en el comportamiento del gas intragranular.	13
2.2. Historia de potencia con condiciones constantes (a) y variables en el tiempo (b), solución a la ecuación de difusión de acuerdo al algoritmo de referencia y a los métodos numéricos implementados para condiciones constantes (c) y variables (d), y error relativo entre el algoritmo de referencia y el método numérico para condiciones constantes (e) y variables (f).	17
2.3. Comparación entre los valores de liberación de gas intragranular calculado mediante métodos numéricos y el algoritmo de referencia (izquierda) y error relativo calculado (derecha). Cada punto se corresponde con una historia de potencia generada aleatoriamente.	18
2.4. Tiempo computacional requerido por cada historia de potencia aleatoria para los distintos algoritmos de resolución de la ecuación de difusión. A la derecha del gráfico se muestra el promedio de todos los experimentos. . . .	19
2.5. Coeficiente de difusión del Xe en la matriz de UO ₂ . Se considera una tasa de fisiones constante de $\dot{F} = 1 \times 10^{19}$ fis m ⁻³ s ⁻¹	22
2.6. Micrografías obtenidas por Baker [30] mediante microscopía electrónica de transmisión (TEM), donde se observan las burbujas intragranulares dispuestas en forma de líneas rectas.	25
2.7. Simulación del radio de las burbujas intragranulares para distintos valores de burbujas nucleadas por fragmento de fisión. Los datos simulados se comparan con los datos experimentales de Baker [30].	26
2.8. Geometría del problema de difusión resuelto por Ham [50] para el cálculo de la tasa de atrapamiento.	29
2.9. Diagrama para el cálculo de la tasa de re-disolución. Adaptado de Olander [47].	30
2.10. Evolución de la concentración de burbujas intragranulares con el quemado y comparación con el resultado experimental obtenido por Baker [30] para una temperatura de 1340 °C.	33

2.11. Evolución del radio de las burbujas intragranulares con el quemado y comparación con el resultado experimental obtenido por Baker [30] para una temperatura de 1340 °C.	34
2.12. Concentración de átomos de gas en burbujas intragranulares y en solución sólida.	34
2.13. Datos experimentales vs. resultados simulados para el radio de las burbujas intragranulares. Las barras de error indican una incertidumbre del 50 % sobre el valor experimental [8], y las líneas punteadas representan el 50 % del máximo error obtenido.	35
2.14. Datos experimentales vs. resultados simulados para la concentración de burbujas intragranulares. Las barras de error indican una incertidumbre del 30 % sobre el valor experimental [8], y las líneas punteadas representan desviaciones con un factor 2 en las medidas experimentales.	36
2.15. Datos experimentales vs. resultados simulados para el hinchamiento debido a las burbujas intragranulares. Las líneas punteadas representan desviaciones con un factor 2 en las medidas experimentales [8].	36
3. Gas intergranular	42
3.1. Evolución de la población de burbujas intergranulares, donde se ejemplifica (a) el comienzo del proceso de hinchamiento, (b) un desarrollo intermedio del hinchamiento, y (c) un estado avanzado del hinchamiento. Adaptado de White [1].	42
3.2. Esquema de la morfología de las burbujas intergranulares. (a) Sección transversal (b) Proyección circular sobre el borde de grano.	44
3.3. Efecto de la presión hidrostática sobre el hinchamiento intergranular ($T = 1500^{\circ}\text{C}$).	47
3.4. Burbuja de gas en equilibrio mecánico con un sólido bajo presión hidrostática.	48
3.5. Representación gráfica del fenómeno de coalescencia de dos burbujas de radio proyectado R_p	50
3.6. Evolución de la concentración y el área proyectada de las burbujas intergranulares (arriba), evolución de la concentración de gas (abajo, izq.) y evolución del hinchamiento intergranular (abajo, der.). La línea vertical FGR indica el inicio de la liberación de gases de fisión.	52
3.7. Comportamiento del período de “incubación” de la liberación de gases de fisión para distintas temperaturas.	53
3.8. Límite de Vitanza para la liberación de gases de fisión.	53
3.9. Coeficiente de difusión en borde de grano según distintos autores. Se considera un espesor de borde de grano $\delta_g = 0.35 \text{ nm}$ [25].	55

3.10.	Parámetro de micro-fisuración m y su derivada, en función de la temperatura, para una temperatura de inflexión de 1773 K.	58
3.11.	Dependencia de la temperatura de inflexión con el quemado.	59
3.12.	Historia de potencia con transitorio de calentamiento y enfriamiento. . . .	59
3.13.	Comparación entre el modelo difusional y el modelo para transitorios de potencia que contempla el fenómeno de micro-fisuras en borde de grano. . .	60
3.14.	Esquema general de las rampas utilizadas en el programa HGR/Halden. . . .	62
3.15.	Datos experimentales vs. resultados simulados para el radio de las burbujas intergranulares. Las líneas punteadas representan el máximo error obtenido.	63
3.16.	Datos experimentales vs. resultados simulados para la concentración de burbujas intergranulares. Las líneas punteadas representan desviaciones con un factor 2 en las medidas experimentales [40].	64
3.17.	Datos experimentales vs. resultados simulados para el hinchamiento debido a las burbujas intergranulares. Las líneas punteadas representan desviaciones con un factor 2 en las medidas experimentales [40].	64
3.18.	Evolución del radio de las burbujas intergranulares en el experimento 4000C-C.	65
3.19.	Evolución de la concentración de burbujas intergranulares en el experimento 4000C-C.	65
3.20.	Evolución del hinchamiento intergranular en el experimento 4000C-C. . . .	66
3.21.	Datos experimentales vs. resultados simulados para la liberación de gases de fisión (FGR).	68
3.22.	Influencia de la temperatura en la liberación de gases para los experimentos (a) ID 20 y (b) ID 14 de la base de datos de Zimmermann.	68
4.	Productos sólidos de fisión	73
4.1.	Comparación entre los modelos empíricos de hinchamiento por productos sólidos de fisión propuestos por MATPRO, FRAPCON y Olander.	77
5.	Crecimiento de grano	79
5.1.	Crecimiento de granos grandes con superficies cóncavas a expensas de granos pequeños con superficies predominantemente convexas. Adaptado de Callister y Rethwisch [3].	80
5.2.	Efecto de la irradiación en el crecimiento de grano.	83
5.3.	Crecimiento de grano para distintas temperaturas de acuerdo al modelo de Ainscough (izquierda) y tiempo necesario para alcanzar el tamaño de grano límite (derecha).	84
5.4.	Comparación de los distintos modelos de crecimiento de grano en condiciones sin irradiación para una temperatura de 1400 °C.	85

5.5.	Influencia del tamaño de grano en la liberación de gases de fisión para una temperatura de 1500 °C. Las líneas llenas no consideran el fenómeno de crecimiento de grano, y las líneas punteadas consideran el modelo de crecimiento de grano de Ainscough et al. [8].	86
5.6.	Influencia del tamaño de grano en el hinchamiento volumétrico para una temperatura de 1500 °C. Las líneas llenas no consideran el fenómeno de crecimiento de grano, y las líneas punteadas consideran el modelo de crecimiento de grano de Ainscough et al. [8].	86
5.7.	Datos experimentales vs. resultados simulados para el tamaño de grano final en experimentos con irradiación.	89
5.8.	Coeficiente de concordancia de Lin (CCC) y su relación con el coeficiente de correlación de Pearson (ρ).	90
5.9.	Datos experimentales vs. resultados simulados para el tamaño de grano final en experimentos sin irradiación.	92
6.	Validación en barras combustibles	95
6.1.	Discretización de una barra combustible de potencia en el código DIONISIO.	96
6.2.	Algoritmo general del código DIONISIO.	97
6.3.	Datos experimentales y simulados para la temperatura de la línea central del combustible en la serie de experimentos CONTACT.	102
6.4.	Datos experimentales y simulados para la liberación de gases de fisión en la serie de experimentos CONTACT.	103
6.5.	Datos experimentales y simulados para la variación del diámetro externo de la vaina en la serie de experimentos CONTACT. No hay resultados disponibles para el experimento CONTACT-2 debido a una falla en el instrumento de medición.	104
6.6.	Historia de potencia para el experimento AN3.	106
6.7.	Comparación entre el FGR alcanzado al final del período de irradiación para la serie de experimentos RISØ-3, utilizando el modelo anterior y el modelo implementado en esta tesis.	107
6.8.	Resultados obtenidos experimentalmente y mediante la simulación con los nuevos modelos implementados en este trabajo y los modelos implementados previamente en DIONISIO para el experimento AN3. Se contempla la evolución de la temperatura de la línea central del combustible, la liberación de gases de fisión, la presión interna de la barra y el tamaño de grano.	108
6.9.	Tiempo de ejecución para la simulación de cada experimento de la serie RISØ-3, utilizando el modelo anterior y el modelo implementado en esta tesis.	109

Índice de tablas

2. Gas intragranular	12
2.1. Parámetros para reproducir el coeficiente de difusión revisado de Turnbull [39].	24
2.2. Número de burbujas que nuclean por cada fragmento de fisión de acuerdo al modelo de Losonen [33].	27
2.3. Isótopos de Xe y Kr liberados por fisión, de acuerdo a Tonks et al. [49]. . .	28
3. Gas intergranular	42
3.1. Detalles de los experimentos y análisis SEM en el programa AGR/Halden Ramp Test.	62
3.2. Detalles de las rampas del programa AGR/Halden Ramp Test (d: días, m: minutos, s: segundos).	62
3.3. Detalles de los datos experimentales de Zimmermann [38] utilizados para la validación del modelo de liberación de gases de fisión.	67
4. Productos sólidos de fisión	73
4.1. Tasa de hinchamiento por productos sólidos de fisión de acuerdo a distintos autores.	75
5. Crecimiento de grano	79
5.1. Características generales de los modelos de crecimiento de grano implementados.	85
5.2. Coeficientes de correlación de concordancia de Lin para los modelos de crecimiento de grano que consideran el fenómeno de irradiación.	91
5.3. Coeficientes de correlación de concordancia de Lin para los modelos de crecimiento de grano que no consideran el fenómeno de irradiación.	93
6. Validación en barras combustibles	95
6.1. Dimensiones, parámetros de irradiación y principales características de la serie de experimentos CONTACT.	101
6.2. Dimensiones y principales características de la serie de experimentos RISØ-3.105	

1. Introducción

Uno de los fenómenos que modifican la forma y propiedades de una pastilla combustible basada en óxidos de uranio durante la irradiación en un reactor es el de hinchamiento o *swelling*. El mismo consiste en un crecimiento volumétrico de la pastilla motorizado principalmente por los productos de fisión sólidos y gaseosos que se producen durante las fisiones y que se alojan en intersticios o poros del material [1].

Aproximadamente un 30 % de los productos de fisión creados durante la operación normal de un reactor son gases nobles, Xenón y Kriptón. Como la solubilidad de estos átomos en la red es muy baja [2], los mismos tienden a precipitar formando burbujas en el interior del grano (burbujas intragranulares) o a difundir por la red cristalina hacia los bordes de grano, en donde pueden precipitar en forma de burbujas intergranulares o tomar caminos rápidos de difusión hacia el exterior de la pastilla. Como la densidad del gas dentro de las burbujas es menor que la del combustible sólido, los átomos de gas que se encuentran dentro de las burbujas ocupan un volumen mayor que el de los átomos físi les que reemplazaron [1]. Esto produce un hinchamiento que resulta ser mayor que la expansión volumétrica que resultaría en el caso que los átomos de gas se hubieran mantenido dispersos atómicamente en la matriz del combustible. El hinchamiento afecta negativamente al desempeño del combustible, ya que promueve el contacto pastilla-vaina (*pellet-cladding mechanical interaction*, o PCMI), lo cual puede acortar su vida útil a causa de las altas tensiones a las que se somete a la vaina. Además, el gas de las burbujas degrada la conductividad térmica, lo cual se traduce en mayores temperaturas del combustible, acelerando todos los fenómenos térmicamente activados.

Las burbujas intragranulares alcanzan tamaños del orden de unos pocos nanómetros, mientras que aquellas ubicadas en los bordes de grano tienden a crecer mucho más, tomando valores de cientos de nanómetros. Este último tipo de burbujas representan la mayor contribución al cambio de volumen del combustible [3] y su crecimiento hace que comiencen a interactuar mecánicamente unas con otras (fenómeno de coalescencia). La interconexión de estas burbujas genera redes de túneles, o un camino de percolación a partir del cual se puede producir la liberación de gases hacia el exterior del combustible. La liberación de gases de fisión también aporta aspectos negativos para la vida útil del combustible. Por un lado, genera un aumento de la presión interna de la barra, haciendo que la vaina se encuentre sometida a tensiones más elevadas que pueden, eventualmente, conducir a una falla. Por otra parte, los gases liberados representan una potencial amenaza en el caso de rotura accidental de la vaina, tanto en el reactor como durante el transporte de la barra combustible gastada hacia una planta de reprocesamiento [1]. Por último, la baja conductividad térmica (λ) del Xenón comparada al gas Helio utilizado generalmente para presurizar la barra combustible ($\lambda_{\text{He}} \approx 20\lambda_{\text{Xe}}$) genera una degradación

en la transferencia de calor en el *gap* que se encuentra entre la pastilla y la vaina [4].

El desarrollo de códigos computacionales abocados a la simulación de los complejos fenómenos involucrados en la vida de un elemento combustible tiene importantes implicancias en diversos aspectos del área nuclear [5]. En primer lugar, las predicciones logradas a partir de este tipo de simulaciones constituyen una fuente de ajustes y mejoras en el diseño del combustible y su vaina, reduciendo significativamente la cantidad de ensayos experimentales necesarios para optimizar un determinado producto. Por otro lado, cuando un combustible es sometido a irradiación se producen una gran cantidad de fenómenos físicos y químicos interrelacionados entre sí, y muchos de los parámetros involucrados no pueden medirse con exactitud debido a la inaccesibilidad de los mismos, o bien debido los altos costos involucrados para obtener un resultado. En tercer lugar, los tiempos involucrados en cualquier tipo de experimento son extensos. Los materiales irradiados requieren de un tratamiento particularmente cuidadoso que sólo puede realizarse en celdas calientes. Aún acelerando el envejecimiento de un determinado elemento combustible, los experimentos pueden requerir meses o años para arrojar alguna conclusión valedera. A partir de la utilización de un código de simulación probado, se puede obtener una base para calcular o simular experimentos complejos en forma económica y segura. Sin embargo, alcanzar la categoría de código “validado” requiere revisar y reformular continuamente los modelos presentes a medida que nuevas bases de datos se vuelven disponibles.

El modelado del comportamiento de los gases de fisión es un paso fundamental para predecir el desempeño termomecánico de combustibles nucleares bajo irradiación mediante códigos de combustible, ya sea en condiciones normales de operación o en condiciones de accidente. Existen varios enfoques posibles para llevar a cabo este propósito, pero en general pueden ser clasificados en dos categorías [6]. Por un lado, existen modelos puramente empíricos, que no requieren de gran potencia de cálculo y han demostrado ser una herramienta eficiente para el diseño de barras combustibles dentro de un rango de aplicación limitado. Este tipo de modelos calcula el comportamiento de los gases de fisión a partir de expresiones directamente relacionadas a variables macroscópicas de la barra combustible (tales como el quemado¹ y la temperatura), obtenidas a partir de correlaciones ajustadas a datos experimentales. Sin embargo, estos modelos no son apropiados para entender los mecanismos subyacentes a los fenómenos físicos, además de que no permiten extender el rango de aplicación a otros tipos de combustibles o condiciones de operación. Por otro lado, se tienen modelos mecánicos, que se enfocan en dar una descripción física del problema. Estos modelos requieren mayor cantidad de información y son más intensivos computacionalmente, pero constituyen una base sólida para el análisis de los fenómenos físicos inherentes al problema, permitiendo extender los modelos más allá de su rango de calibración, así como también su aplicación a nuevos tipos de combustibles y

¹El quemado se refiere a la energía total liberada por unidad de masa durante la vida del combustible. Se suele expresar en relación a la masa total del combustible (UO_2) o la masa del metal pesado (U), en unidades de MWd/tn, GWd/tn o MWd/kg (siendo d: días).

materiales. Otra ventaja de este enfoque es la posibilidad de incorporar resultados teóricos y experimentales de diferentes escalas; a modo de ejemplo, se pueden utilizar resultados de simulaciones atomísticas y de dinámica molecular validadas experimentalmente para definir parámetros utilizados en los modelos mecanísticos.

Históricamente, el desarrollo de modelos para simular el fenómeno de hinchamiento ha sido objeto de numerosos trabajos de investigación. En particular, el estudio del hinchamiento debido a productos gaseosos de fisión ha recibido la mayor parte del interés debido a que reviste una complejidad mucho mayor en su comportamiento a comparación del caso de los productos sólidos. Un trabajo pionero en lo que respecta a su modelado es el de Booth [7], quien por primera vez aplica la ecuación de difusión al problema utilizando un modelo de esferas equivalentes, donde el radio de cada esfera se corresponde con el radio del grano del combustible policristalino. Algunas desviaciones de sus resultados con mediciones experimentales llevaron a refinar este modelo, incorporando el efecto que genera la interacción entre los átomos de gas que migran hacia el borde de grano y los defectos que se encuentran en la matriz del combustible [8], así como también la posibilidad de los fragmentos de fisión energéticos de destruir —total o parcialmente— las burbujas que se forman en el seno del grano [9]. Estos avances permiten el desarrollo de modelos de hinchamiento relativamente simples [10-12], en los cuales se supone generalmente que el gas dentro de las burbujas sigue la ley de los gases ideales y que toda la población de burbujas posee un único tamaño promedio. A partir de la década de 1980, los modelos mecanísticos comienzan a tener en cuenta la interrelación existente entre el fenómeno de hinchamiento por productos gaseosos y la liberación de gases de fisión. Wood y Matthews [13, 14] presentan un modelo de estas características aplicable a condiciones normales de operación del reactor, denominado OGRES (*Operational Gas RElease and Swelling model*). El modelo consiste en un módulo abocado a la simulación del gas intra-granular, el cual se basa en la resolución de la ecuación de difusión mediante un esquema numérico desarrollado previamente [15], y un módulo dedicado al gas intergranular. El módulo intergranular hace una distinción entre las burbujas que se encuentran en la unión entre dos granos (*grain-faces*), y aquellas que se encuentran en la unión entre tres granos (*grain-edges*), y analiza la evolución de ambos tipos de cavidades antes y después de la formación del camino de percolación que conlleva a la liberación de los gases de fisión. White y Tucker [16] proponen un modelo de similares características, con el agregado de un tratamiento especial para aquellas burbujas que se encuentran en la unión entre cuatro granos (*grain-corner*). Además, también tienen en consideración los isótopos inestables mediante la incorporación de un término de decaimiento radiactivo en la ecuación de difusión. En 2011, Khvostov et al. [17] publican un modelo denominado GRSW-A (*Gas Release and gaseous SWelling Advanced*), desarrollado para ser utilizado en conjunto con el código de combustible FALCON. Este modelo es válido tanto para condiciones estacionarias como transitorios rápidos de potencia, y tiene como particularidad un tratamiento

detallado de la evolución de la microestructura del combustible, en el cual se tiene en cuenta el fenómeno de poligonalización², además del crecimiento de grano equiaxial típico a altas temperaturas. Por último, recientemente y en forma de trabajo conjunto entre los grupos de investigación del Politecnico di Milano, el Institute for Transuranium Elements y el Idaho National Laboratory, se presentaron una serie de modelos mecánicos para el comportamiento del gas intragranular [18] e intergranular [19], que luego fueron extendidos mediante la adhesión de distintos módulos para contemplar fenómenos característicos que ocurren bajo transitorios de potencia (tales como la fisuración de bordes de grano [20] o el crecimiento abrupto del tamaño de las burbujas intragranulares [21]), así como también un análisis de sensibilidad para estudiar el efecto de la incertidumbre de los distintos parámetros asociados al modelo en los resultados finales [22].

²El fenómeno de poligonalización intragranular se refiere a la subdivisión de los granos que tiene lugar en condiciones de largos períodos de irradiación a bajas temperaturas, típico de la periferia de la pastilla combustible, en lo que se conoce como “estructura de alto quemado” (*high burn-up structure*, o HBS).

1.1. Barras combustibles

Un reactor nuclear de potencia es un sistema de producción de energía que utiliza reacciones nucleares involucradas en la fisión controlada de átomos de uranio para obtener energía nuclear. La mayoría de los reactores utilizados actualmente en el mundo son reactores térmicos, en los cuales se disminuye la energía de los neutrones a unos pocos eV, de manera de aumentar la probabilidad de interacción entre neutrones y núcleos físi­les. Los componentes esenciales de un reactor térmico son: un núcleo en donde se encuentran los elementos combustibles que contienen el material físi­l, un material moderador cuya función es frenar los neutrones hasta alcanzar velocidades adecuadas como para producir las reacciones nucleares, un refrigerante que extrae el calor generado por el combustible, y un reflector que rodea al núcleo y evita que los neutrones escapen del sistema. En un reactor de agua a presión típico (PWR, por sus siglas en inglés), las reacciones nucleares dentro del núcleo del reactor generan calor que es removido por el refrigerante que circula por el circuito primario. Un generador de vapor produce la transferencia de este calor al agua que circula por el circuito secundario. El vapor a alta presión impulsa a las turbinas, cuyos ejes mueven un alternador que transforma la energía mecánica en electricidad. Finalmente, cuando el vapor de agua ha pasado por la turbina, se envía a un condensador donde se enfría y se convierte de nuevo en agua líquida. Después, el agua se transporta de nuevo al generador de vapor para volver a conseguir vapor, conformando un circuito cerrado [5].

El dióxido de uranio (UO_2) es el óxido combustible más utilizado y el que acumula mayor experiencia en todo su ciclo de procesamiento. El mismo se compacta en forma de pastillas cilíndricas a partir del sinterizado del material en polvo, y luego se envainan en tubos de Zircaloy, constituyendo una barra combustible. La barra se encuentra cerrada herméticamente mediante dos tapones soldados y su tamaño —y por ende, la cantidad de pastillas que contiene—, depende del diseño del reactor. Un cierto número de barras, ensambladas en configuraciones predeterminadas por el tamaño y forma del núcleo del reactor, constituyen un elemento combustible (*fuel assembly*). A modo de ejemplo, en reactores PWR típicos se tienen entre 157 y 214 elementos combustibles dispuestos en una matriz cuadrada de 17x17, donde cada elemento combustible se compone de 264 barras combustibles [23]. Por lo tanto, en total se tienen

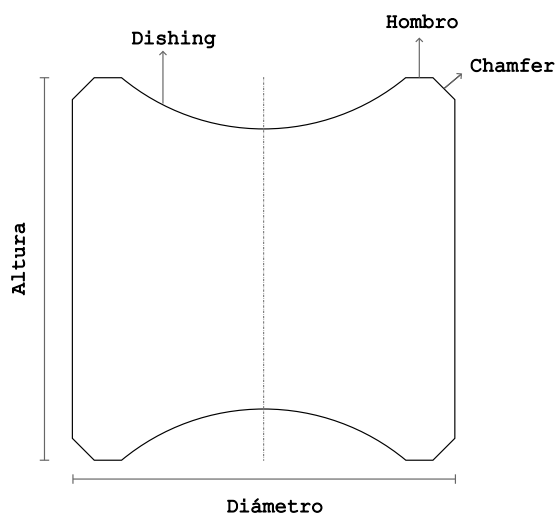


Figura 1.1: Esquema de la geometría de una pastilla combustible.

entre 41448 y 56496 barras combustibles dentro del núcleo del reactor.

A modo de ilustrar algunos términos y conceptos utilizados a lo largo de este trabajo de tesis, a continuación se detallan los componentes principales de una barra combustible:

- La vaina: Es un tubo de metal cuyo espesor ronda generalmente entre 0.4 y 1.0 mm [5], y que se encuentra entre el material refrigerante y las pastillas combustibles. Su finalidad es prevenir la corrosión del combustible, así como también evitar la liberación de productos de fisión hacia el refrigerante. En general, las vainas son de una aleación de zirconio, pudiendo contener aleantes como estaño, niobio, hierro, cromo y níquel, entre otros. La elección de este material se basa en una combinación de propiedades favorables: posee una baja sección eficaz de absorción neutrónica, excelentes propiedades mecánicas y buena resistencia a la corrosión.
- La pila de combustibles: En general, está conformada por pastillas cilíndricas de UO_2 . Las dimensiones características de estas pastillas varían dependiendo del tipo de elemento del que forman parte, pero los valores típicos oscilan entre 1.0-1.2 cm para el diámetro y 1.0-2.0 cm para la altura [5]. Algunos diseños de pastilla presentan un *dishing*, es decir, un espacio cóncavo en las tapas que posee una profundidad de 0.01-0.03 cm y que permite absorber los cambios dimensionales de la pastilla en la dirección axial durante la operación, para así evitar el contacto extremo entre las mismas. Además, algunas pastillas pueden presentar un bisel (o *chamfer*), cuyas dimensiones pueden oscilar entre 0.01-0.02 cm [5]. En la Figura 1.1 se observa un esquema de una pastilla tipo CANDU fuera de escala, con todas las características geométricas previamente mencionadas.
- El resorte: Su función es mantener la pila ajustada y permitir el espacio para el *plenum*, sector que constituye casi el total del volumen libre de la barra y donde se alojan los gases de fisión. El resorte se construye de acero trabajado en frío y se ubica en la parte superior de la barra, manteniendo la columna de combustible en posición y evitando el colapso de la vaina en esa zona por la presión del refrigerante.

En la Figura 1.2 se muestra un esquema de una barra combustible con sus partes constitutivas.

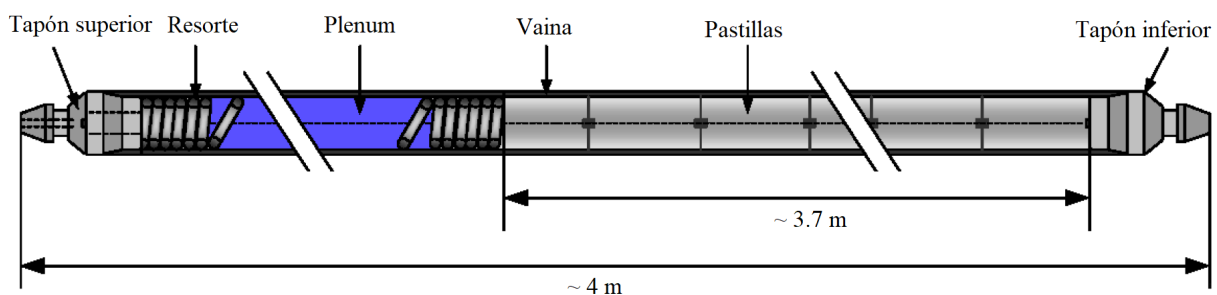


Figura 1.2: Esquema de una barra combustible.

1.2. El código DIONISIO

Desde el año 2002, la Sección Códigos y Modelos viene desarrollando una tarea continuada en la elaboración del código DIONISIO, que ha dado lugar, hasta el presente, a diversos trabajos de tesis de maestría [24-27] y tres de doctorado [5, 28, 29], además de diversas publicaciones en revistas internacionales y presentaciones a congresos dentro y fuera del país [30-38]. Se trata de un programa que atiende a la simulación del comportamiento del combustible nuclear bajo condiciones normales de operación del reactor, así como de quemado extendido y de accidentes tipo LOCA (*Loss of Coolant Accident*, o accidentes por pérdida de refrigerante). Dicho código, que se encuentra en etapa de validación y optimización continua, fue seleccionado por el Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) para participar del proyecto internacional “*Improvement of Computer Codes Used for Fuel Behaviour Simulation - FUMEX III*” (2008-2012) [39]. En igual carácter, participa actualmente en el proyecto “*Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels (ATF-TS)*” (2021-2024) [40], también patrocinado por el OIEA. El propósito central de estos programas es la intercomparación de códigos de simulación, así como la comparación de sus resultados con valores medidos experimentalmente. Asimismo, y en estrecha colaboración con la División Diseño de Combustibles de la Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear (CNEA), se realizaron cálculos predictivos del comportamiento del combustible para el reactor CAREM, realizando diversos informes técnicos que contribuyeron al proyecto en la etapa de ingeniería de detalle [41].

En el tema particular de interés, los fenómenos de densificación y de hinchamiento de la pastilla de combustible, debidos a procesos como la desaparición progresiva de la porosidad de fabricación y a la generación de productos de fisión sólidos y gaseosos, fueron motivo de estudio en épocas que resultan ya lejanas [42, 43]. Sin embargo, dadas las mayores exigencias a las que se tiende a someter a los combustibles, en particular prolongando su tiempo de permanencia en servicio, se ha renovado el interés por estos temas, que han dado lugar a investigaciones recientes en diferentes laboratorios [44, 45]. La Sección Códigos y Modelos ha realizado diversos trabajos relacionados con la extensión del quemado del combustible y su efecto sobre la microestructura del material de la pastilla combustible, la formación de burbujas de gases de fisión, la liberación de estos gases a la atmósfera interna de la barra, entre otros [38, 46-49]. Además, recientemente se ha desarrollado un nuevo modelo de densificación de pastillas combustibles bajo irradiación [50] que, junto al modelo de hinchamiento, pretende obtener una descripción más realista del comportamiento del combustible.

1.3. Objetivos de este trabajo

A partir de analizar diferentes modelos que se exponen en la literatura específica se elaboró un modelo para explicar los fenómenos de hinchamiento del combustible bajo condiciones de irradiación. En particular, se desarrolló un modelo mecanístico para el hinchamiento debido a productos gaseosos de fisión (que incluye tanto el hinchamiento intragranular e intergranular, acoplado además al fenómeno de liberación de gases de fisión), y se incluyó un modelo que estima la contribución de los productos sólidos de fisión. En general, el enfoque para la elección de los modelos surge a partir de una relación de compromiso entre otorgar un tratamiento físico al problema, y que sean lo suficientemente eficientes, desde el punto de vista computacional, como para poder ser implementados en un código de combustible. Por otra parte, se revisaron los modelos de crecimiento de grano implementados en DIONISIO, y se implementaron nuevos modelos para ser evaluados en distintas condiciones de funcionamiento del reactor. Todos estos modelos fueron, en primera instancia, analizados y testeados de manera separada a partir de datos experimentales existentes en la literatura. Una vez ajustados los parámetros de los modelos, se los codificó en el lenguaje de programación FORTRAN para ser incluidos en el código de combustible DIONISIO y probar su funcionamiento en forma coordinada con las restantes subrutinas del programa. Finalmente, con la nueva versión del código se han simulado las condiciones de experimentos realizados en diversos laboratorios, cuyos datos están disponibles en las bibliotecas que el OIEA ofrece a los grupos de investigación que participan de sus programas.

Esta tesis está estructurada de la siguiente manera. En la Sección 2 se presenta el modelo para representar el comportamiento de los gases de fisión intragranular, para el cual se resuelve la difusión de los átomos de gas por la red cristalina. En la Sección 3 se tienen en cuenta los gases de fisión que llegan al borde de grano y que pasan a formar parte de las burbujas intergranulares. Esas burbujas, a partir de procesos de crecimiento y coalescencia, pueden eventualmente interconectarse y provocar la liberación de gases de fisión. En la Sección 4 se describen los modelos empíricos utilizados para representar el hinchamiento debido a los productos sólidos de fisión, cuyo comportamiento es bien diferenciado de los productos gaseosos debido a su incapacidad de precipitar en forma de burbujas. En la Sección 5 se realiza una reseña de los distintos modelos de crecimiento de grano disponibles, y se presenta un análisis estadístico para seleccionar el modelo más adecuado. En cada sección se incluyen las pruebas de los modelos actuando de forma independiente y se comparan sus resultados con medidas experimentales de la literatura. En la Sección 6 se muestran los resultados de la nueva versión de DIONISIO, incluyendo los modelos desarrollados durante este trabajo, a partir de una serie de comparaciones con experimentos complejos en barras combustibles. Por último, en la Sección 7 se presentan las conclusiones y los posibles trabajos a futuro.

Referencias

- [1] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. Technical Information Center, Office of Public Affairs, Energy Research and Development Administration, 1976. Cap. 13.
- [2] R. J. M. Konings, ed. *Comprehensive Nuclear Materials, Volume 3: Advanced Fuels/Fuel Cladding/Nuclear Fuel Performance Modeling and Simulation, Chapter 3.19: Oxide Fuel Performance Modeling and Simulations*. Elsevier Science, 2012.
- [3] A. R. Massih y K. Forsberg. "Calculation of grain boundary gaseous swelling in UO_2 ". *Journal of Nuclear Materials* 377 (2008), págs. 406-408.
- [4] H. Bailly, D. Ménessier y C. Prunier. *The Nuclear Fuel of Pressurized Water Reactors and Fast Reactors: Design and Behaviour*. Lavoisier Publishing e Intercept Ltd, 1999.
- [5] A. Soba. "Simulación del comportamiento termomecánico de una barra combustible en operación". Tesis de doctorado. Universidad Nacional de Buenos Aires, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, 2007.
- [6] M. R. Tonks, D. Andersson, S. R. Phillpot, Y. Zhang, R. Williamson, C. R. Stanek, B. P. Uberuaga y S. L. Hayes. "Mechanistic materials modeling for nuclear fuel performance". *Annals of Nuclear Energy* 105 (2017), págs. 11-24.
- [7] A. H. Booth. *A method of calculating fission gas diffusion from UO_2 fuel and its application to the X-2-f loop test*. Inf. téc. CRDC-721. Ontario, Canadá: Atomic Energy of Canada Limited, Chalk River Project, Research y Development, 1957.
- [8] J. R. MacEwan y P. A. Morel. "Migration of Xenon through a UO_2 matrix containing trapping sites". *Nuclear Applications* 2(2) (1966), págs. 158-170.
- [9] A. D. Wapham. "Electron microscope observation of the fission gas bubble distribution in UO_2 ". *Nuclear Applications* 2(2) (1966), págs. 123-130.
- [10] G. L. Kulcinski, R. D. Leggett, C. R. Hann y B. Mastel. "Fission gas induced swelling in uranium at high temperatures and pressures". *Journal of Nuclear Materials* 30 (1968), págs. 303-313.
- [11] C. C. Dollins y H. Ocken. "A fission gas swelling model incorporating resolution effects". *Nuclear Applications and Technology* 9(2) (1970), págs. 141-147.
- [12] C. C. Dollins. "Fission gas swelling and long-range migration at low temperatures". *Journal of Nuclear Materials* 49 (1973), págs. 10-20.
- [13] J. R. Matthews y M. H. Wood. "A simple operational gas release and swelling model, I. Intragranular gas". *Journal of Nuclear Materials* 91 (1980), págs. 35-40.
- [14] J. R. Matthews y M. H. Wood. "A simple operational gas release and swelling model, II. Grain boundary gas". *Journal of Nuclear Materials* 91 (1980), págs. 241-256.
- [15] J. R. Matthews y M. H. Wood. "An efficient method for calculating diffusive flow to a spherical boundary". *Nuclear Engineering and Design* 56 (1980), págs. 439-443.
- [16] R. J. White y M. O. Tucker. "A new fission-gas release model". *Journal of Nuclear Materials* 118 (1983), págs. 1-38.
- [17] G. Khvostov, K. Mikityuk y M. A. Zimmermann. "A model for fission gas release and gaseous swelling of the uranium dioxide fuel coupled with the FALCON code". *Nuclear Engineering and Design* 241 (2011), págs. 2983-3007.

- [18] D. Pizzocri, G. Pastore, T. Barani, A. Magni, L. Luzzi, P. Van Uffelen, S. A. Pitts, A. Alfonsi y J. D. Hales. “A model describing intra-granular fission gas behaviour in oxide fuel for advanced engineering tools”. *Journal of Nuclear Materials* 502 (2018), págs. 323-330.
- [19] G. Pastore, L. Luzzi, V. Di Marcello y P. Van Uffelen. “Physics-based modelling of fission gas swelling and release in UO_2 applied to integral fuel rod analysis”. *Nuclear Engineering and Design* 256 (2013), págs. 75-86.
- [20] T. Barani, E. Bruschi, D. Pizzocri, G. Pastore, P. Van Uffelen, R. L. Williamson y L. Luzzi. “Analysis of transient fission gas behaviour in oxide fuel using BISON and TRANSURANUS”. *Journal of Nuclear Materials* 486 (2017), págs. 96-110.
- [21] T. Barani, G. Pastore, A. Magni, D. Pizzocri, P. Van Uffelen y L. Luzzi. “Modeling intra-granular fission gas bubble evolution and coarsening in uranium dioxide during in-pile transients”. *Journal of Nuclear Materials* 538 (2020), pág. 152195.
- [22] G. Pastore, L. P. Swiler, J. D. Hales, S. R. Novascone, D. M. Perez, B. W. Spencer, L. Luzzi, P. Van Uffelen y R. L. Williamson. “Uncertainty and sensitivity analysis of fission gas behavior in engineering-scale fuel modeling”. *Journal of Nuclear Materials* 456 (2015), págs. 398-408.
- [23] R. J. M. Konings, ed. *Comprehensive Nuclear Materials, Volume 3: Advanced Fuels/Fuel Cladding/Nuclear Fuel Performance Modeling and Simulation, Chapter 2.19: Fuel Performance of Light Water Reactors (UO_2 and MOX)*. Elsevier Science, 2012.
- [24] A. Soba. “Simulación de fenómenos termomecánicos en una barra combustible de un reactor de potencia en operación”. Tesis de maestría. Universidad Nacional de General San Martín, 2002.
- [25] M. Lemes Lapasta. “Estudio analítico y numérico de los efectos de la irradiación hasta alto quemado en combustibles de reactores de potencia”. Tesis de maestría. Universidad Nacional de General San Martín, 2013.
- [26] M. E. Cazado. “Evolución microestructural en pastillas combustibles bajo irradiación”. Tesis de maestría. Universidad Nacional de General San Martín, 2019.
- [27] M. E. Loza Peralta. “Modelado de la temperatura del PLENUM en una barra combustible para reactores de potencia en operación”. Tesis de maestría. Universidad Nacional de General San Martín, 2019.
- [28] E. Goldberg. “Modelado de formación y evolución de fisuras en materiales de una barra de combustible”. Tesis de doctorado. Universidad Nacional de General San Martín, 2021.
- [29] M. Lemes Lapasta. “Simulación de una barra combustible en condiciones de accidente tipo LOCA”. Tesis de doctorado. Universidad Nacional de General San Martín, 2021.
- [30] A. Soba y A. Denis. “Simulation with DIONISIO 1.0 of thermal and mechanical pellet-cladding interaction in nuclear fuel rods”. *Journal of Nuclear Materials* 374 (2008), págs. 32-43.
- [31] A. Soba y A. Denis. “Model of fracture for the Zry cladding of nuclear fuel rods included in the code DIONISIO 1.0”. *Nuclear Engineering and Design* 238 (2008), págs. 3292-3298.
- [32] A. Soba y A. Denis. *Simulation with the DIONISIO 1.0 code of the operation behavior of PWR PHWR fuel rods*. NEA Data Bank, 2007. URL: http://www.nea.fr/html/science/fuel/Informe_DIONISIO.pdf.
- [33] A. Soba y A. Denis. “Contacto intermitente y localizado entre dos superficies. Aplicación al caso de la interacción pastilla-vaina (PCI) en un combustible nuclear de potencia”. *Revista Internacional de Métodos Numéricos para Cálculo y Diseño en Ingeniería* 25, 1 (2009), págs. 79-89.

- [34] A. Soba y A. Denis. “Finite element simulation of the thermoelastic behavior of a fuel rod”. Proceedings of the Technical Committee Meeting on Fuel Chemistry and Pellet-Clad Interaction Related to High Burnup Fuel. International Atomic Energy Agency. Nyköping, Sweden, 1998.
- [35] A. Soba y A. Denis. “Simulation of pellet-cladding thermomechanical interaction and fission gas release”. *Nuclear Engineering and Design* 223 (2003), págs. 211-229.
- [36] A. Soba y A. Denis. “Simulation of pellet-cladding thermomechanical interaction and fission gas release”. Proceedings of the Technical Committee Meeting on Nuclear Fuel Behaviour Modelling at High Burnup and its Experimental Support. International Atomic Energy Agency. Windermere, United Kingdom, 2000.
- [37] A. Soba y A. Denis. “Simulation of PHWR fuel rods behavior with the code DIONISIO 1.0”. Technical Meeting on Pressurised Heavy Water Reactor (PHWR) Fuel Modelling. International Atomic Energy Agency. Mumbai, India, 2006.
- [38] A. Soba, A. Denis, L. Romero, F. Villarino y F. Sardella. “A high burn-up model developed for the DIONISIO code”. *Journal of Nuclear Materials* 433 (2013), págs. 160-166.
- [39] *Improvement of Computer Codes Used for Fuel Behaviour Simulation (FUMEX-III), Report of the Coordinated Research Project 2008-2012*. Inf. téc. IAEA-TECDOC-1697. Vienna, Austria: International Atomic Energy Agency, 2013.
- [40] *Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels (ATF-TS)*. International Atomic Energy Agency. URL: <https://www.iaea.org/projects/crp/t12032>.
- [41] *Estudio del comportamiento de barras combustibles para el reactor CAREM 25 mediante el código DIONISIO*. Inf. téc. IN-CN-01/12 Versión 0, Noviembre 2012, Versión 1, Septiembre 2013, Versión 2, IN-CN-02/14 liberada en Octubre 2014. El informe fue utilizado como base de diseño para el combustible del reactor CAREM. Buenos Aires, Argentina.
- [42] M. D. Freshley, D. W. Brite, J. L. Daniel y P. E. Hart. “Irradiation-induced densification of UO₂ pellet fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 62 (1976), págs. 138-166.
- [43] N. Lindman. “On the rate of in-reactor UO₂ densification”. *Journal of Nuclear Materials* 71 (1977), págs. 73-77.
- [44] M. C. Paraschiv, A. Paraschiv y V. V. Grecu. “On the nuclear oxide fuel densification, swelling and thermal re-sintering”. *Journal of Nuclear Materials* 302 (2002), págs. 109-124.
- [45] M. C. Paraschiv, A. Paraschiv y V. V. Grecu. “Models for fuel porosity evolution in UO₂ under various regimes of reactor operation”. *Nuclear Engineering and Design* 272 (2014), págs. 65-83.
- [46] A. Soba, M. Lemes, M. E. González, A. Denis y L. Romero. “Simulation of the behaviour of nuclear fuel under high burnup conditions”. *Annals of Nuclear Energy* 70 (2014), págs. 147-156.
- [47] A. Soba, M. Lemes y A. Denis. “An empirical formulation to describe the evolution of the high burnup structure”. *Journal of Nuclear Materials* 456 (2015), págs. 174-181.
- [48] A. Soba y A. Denis. “DIONISIO 2.0: new version of the code for simulating a whole nuclear fuel rod under extended irradiation”. *Nuclear Engineering and Design* 292 (2015), págs. 213-221.
- [49] M. Lemes, A. Soba, H. Daverio y A. Denis. “Inclusion of models to describe severe accident conditions in the fuel simulation code DIONISIO”. *Nuclear Engineering and Design* 315 (2017), págs. 1-10.
- [50] M. E. Cazado y A. Denis. “Model of nuclear fuel pellets densification under irradiation and isothermal conditions: Application to UO₂ fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 510 (2018), págs. 585-595.

2. Gas intragranular

Uno de los aspectos fundamentales en cualquier código de cálculo para la predicción del hinchamiento y la liberación de gases de fisión es el modelo del comportamiento del gas intragranular, ya que el mismo funciona como base para los modelos de todos los procesos posteriores. El modelado del comportamiento del gas intragranular comprende varios fenómenos que se dan de manera simultánea. En primer lugar, se produce la creación de átomos de gas en la matriz del combustible, debido a los procesos de fisión nuclear. Como la solubilidad de estos átomos en la red es muy baja, los mismos tienden a precipitar y a formar burbujas dentro del grano. En condiciones normales de operación del reactor, estas burbujas son pequeñas, con una distribución de tamaños relativamente uniforme, y con diámetros que van entre 1 y 2 nm. Una vez nucleadas, la población de burbujas intragranulares va a evolucionar de acuerdo a dos mecanismos de distinta naturaleza que compiten de forma opuesta: por un lado el atrapamiento, controlado por la difusión, mediante el cual los átomos de gas dispersos son “capturados” por las burbujas, y por otro lado la re-disolución, controlada por la irradiación, mediante el cual las burbujas son destruidas debido a los eventos de fisión y los átomos son “devueltos” hacia la matriz. Debido a que la migración de burbujas intragranulares se produce solo a muy altas temperaturas (2000 °C) [1, 2], se supone que estas cavidades se mantienen inmóviles bajo condiciones normales de operación.

Es importante destacar que, a partir de datos experimentales en combustibles de alto quemado y sometidos a transitorios de potencia, se ha comprobado la existencia de una segunda población de burbujas intragranulares, caracterizadas por tamaños que pueden llegar a los cientos de nanómetros [3-6]. Si bien se desconocen los mecanismos de este crecimiento desmedido, hay evidencia que las dislocaciones juegan un papel importante durante este proceso [7]. Por simplicidad, el modelo que aquí se presenta no tiene en cuenta aún estas consideraciones.

2.1. Modelo del comportamiento del gas intragranular

Para modelar el comportamiento del gas intragranular, se toma como base el trabajo de Pizzocri et al. [8], publicado en el año 2018. Este modelo tiene en cuenta el cálculo de la nucleación de las burbujas intragranulares, su crecimiento debido al atrapamiento de átomos de gas, su destrucción debido a la interacción con fragmentos de fisión, así como también la difusión neta de átomos de gas hacia los bordes de grano. Por otro lado, el modelo no considera la migración de las burbujas intragranulares, así como tampoco se considera la interacción entre ellas (es decir, se ignora el proceso de coalescencia, debido al tamaño pequeño de las burbujas). En la Figura 2.1 se muestra un esquema con los principales mecanismos involucrados en el modelado del comportamiento del gas intragranular.

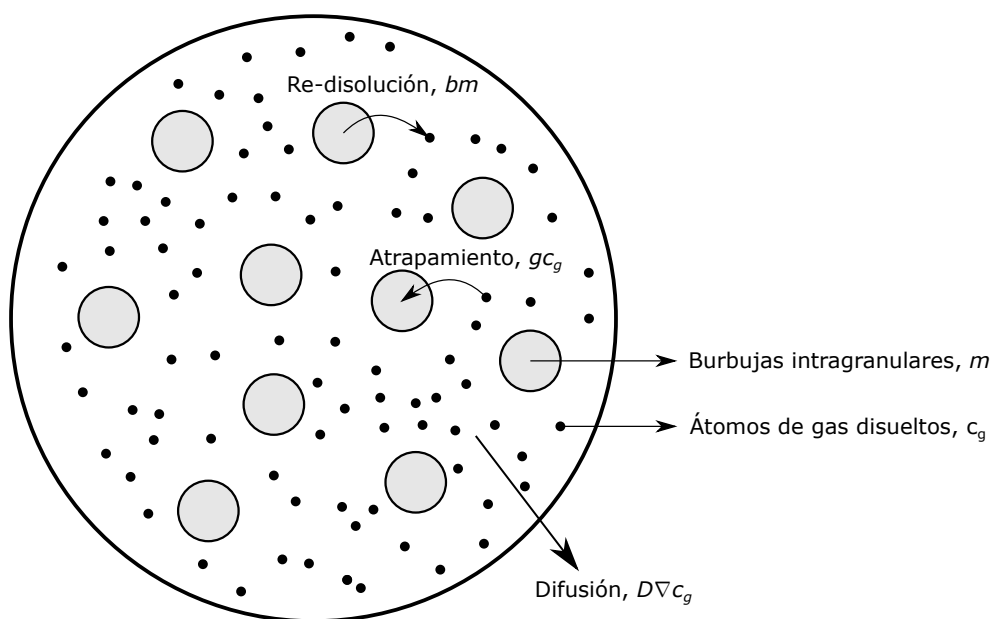


Figura 2.1: Esquema demostrativo de los mecanismos que intervienen en el comportamiento del gas intragranular.

La ecuación de difusión, en coordenadas esféricas, en un grano ideal de combustible de radio a está dado por:

$$\frac{\partial c_g}{\partial t} = D \cdot \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial c_g}{\partial r} \right) + b \cdot m - g \cdot c_g + \beta \quad (2.1)$$

donde c_g es la concentración de átomos de gas en la matriz (m^{-3}), m es la concentración de átomos de gas en burbujas intragranulares (m^{-3}), D es el coeficiente de difusión ($m^2 s^{-1}$), b es la tasa de re-disolución de átomos de gas atrapados en burbujas intragranulares (s^{-1}), g es la tasa de absorción de átomos de gas disueltos (s^{-1}), β es la tasa de generación de gas ($m^{-3} s^{-1}$), t es el tiempo (s) y r es la coordenada radial en el grano esférico (m). En las Secciones 2.1.1 a 2.1.5 se detalla el cálculo de cada uno de los parámetros involucrados en esta ecuación.

Por otro lado, recordando que las burbujas se mantienen estacionarias, la ecuación que representa la dependencia temporal de los átomos de gas atrapados en las burbujas va a estar dada por:

$$\frac{\partial m}{\partial t} = g \cdot c_g - b \cdot m \quad (2.2)$$

Para simplificar la resolución de las ecuaciones acopladas (2.1) y (2.2), Speight [9] propone que, para las escalas de tiempo consideradas típicamente¹, las trampas se encuentran saturadas debido a que existe un equilibrio instantáneo entre la absorción y la re-disolución, es decir, $\partial m/\partial t = 0$. Otra interpretación posible es que la absorción y la re-disolución de gas hacia y desde las burbujas intragranulares es más rápida que la difusión hacia los bordes de grano, lo cual implica que un átomo de gas pasará en promedio por varios eventos de absorción y re-disolución en las burbujas antes de alcanzar el borde de grano [9]. Esta aproximación, denominada cuasi-estacionaria, es utilizada por la mayoría de los códigos de simulación actuales. Es importante tener en cuenta que, si bien es una excelente aproximación en condiciones normales de operación del reactor, donde los parámetros temporales varían de manera relativamente lenta, su aplicación no es válida en aquellos transitorios rápidos de potencia (del orden de los milisegundos) a alta temperatura que, por ejemplo, pueden ocurrir en condiciones de accidente² [12].

Teniendo en cuenta esto, a partir de la Ecuación (2.2) se obtiene:

$$g \cdot c_g = b \cdot m \quad (2.3)$$

Considerando que la concentración total de átomos de gas contenido en cada grano (incluyendo tanto los átomos disueltos como aquellos en burbujas intragranulares) está dada por:

$$\psi = c_g + m = c_g \left(1 + \frac{g}{b}\right) \quad (2.4)$$

se puede obtener una única ecuación simplificada a partir de las Ecuaciones (2.1) y (2.4):

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = D_{\text{eff}} \cdot \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \psi}{\partial r} \right) + \beta \quad (2.5)$$

donde $D_{\text{eff}} = D \cdot b/(b + g)$ es el coeficiente de difusión efectivo, el cual se puede interpretar como una corrección que se aplica al coeficiente de difusión D de forma tal de tener en cuenta los efectos del atrapamiento y la re-disolución. Esta reducción aparente en el coeficiente de difusión se debe a que parte de los átomos de gas se encuentran atrapados en burbujas inmóviles y, por lo tanto, no se encuentran disponibles para difundir por la red cristalina.

¹Konings [10] establece que la población de burbujas intragranulares se puede considerar saturada para quemados mayores a 0.5 MWd/kgU.

²Un ejemplo de interés práctico son los accidentes iniciados por reactividad (*reactivity-initiated accident*, RIA), donde se producen excursiones de potencia muy rápidas debido a fallas en los sistemas relacionados a las barras de control, o accidentes por pérdidas de refrigerante (LOCA) en centrales tipo CANDU [11].

Resolución de la ecuación de difusión

La condición inicial para la Ecuación (2.5) establece una concentración nula a tiempo cero. Las condiciones de contorno suponen que la concentración de gases de fisión en el borde de grano es nula (condición de sumidero infinito), lo cual es razonable considerando que los átomos de gas que difunden hacia el borde de grano pueden nuclear o ser absorbidos por las burbujas intergranulares muy fácilmente [13]. Por último, por condiciones de simetría esférica se establece que la derivada espacial en el centro del grano es nula. Matemáticamente se pueden expresar las condiciones iniciales y de contorno como:

$$\begin{cases} \psi(r, 0) = 0 \\ \psi(a, t) = 0 \\ \frac{\partial \psi(0, t)}{\partial r} = 0 \end{cases} \quad (2.6)$$

La Ecuación (2.5) posee solución analítica para el caso en que D_{eff} y β son constantes. Si se considera una concentración inicial uniforme $\psi(r, 0) = \bar{\psi}_0$ y se promedia la concentración total sobre el volumen del grano, la solución está dada por [1, 14]:

$$\begin{aligned} \bar{\psi}(t) = \bar{\psi}_0 \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D_{\text{eff}} t}{a^2}\right) \\ + \frac{\beta a^2}{15 D_{\text{eff}}} \left[1 - \frac{90}{\pi^4} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D_{\text{eff}} t}{a^2}\right) \right] \end{aligned} \quad (2.7)$$

Ahora bien, en problemas de aplicación real, D_{eff} y β varían con el tiempo, es decir, $D_{\text{eff}} = D_{\text{eff}}(t)$ y $\beta = \beta(t)$. Esto se debe a que el coeficiente de difusión varía con la temperatura y la tasa de fisiones (ver Sección 2.1.1), mientras que la tasa de generación de gas es proporcional a la tasa de fisiones (ver Sección 2.1.3). A su vez, la temperatura depende de la tasa de fisiones, que en general es variable en el tiempo. Por lo tanto, en historias de potencia³ variables la Ecuación (2.5) no posee solución analítica, y sólo se puede resolver mediante métodos numéricos [15]. Una gran cantidad de trabajos de investigación se realizaron para desarrollar algoritmos precisos y lo suficientemente eficientes computacionalmente como para ser incluidos en códigos de combustibles, entre los cuales se pueden citar los algoritmos ANS-5.4 [16, 17], URGAS [18], LOAM [19], A-2-step [19], el método de Vãth [20], el método de aproximación por dos zonas [15] y el método de volumen finito [21]. En lo que respecta a este trabajo, se implementaron tres algoritmos distintos, denominados FORMAS [1, 22, 23], SpectralDiffusion [24] y PolyPole1 [14, 25]. Si bien los detalles matemáticos de cada algoritmo exceden los alcances de este trabajo,

³En este trabajo se denomina a una historia de potencia como una serie de uno o más pasos de tiempo en los cuales la tasa de fisiones y la temperatura se mantienen constantes o varían linealmente. En el código de combustible DIONISIO, la historia de potencia se suministra en forma de potencia lineal [W/m], a partir de la cual el código calcula la temperatura y la tasa de fisiones.

todos los métodos se basan en escribir la solución como una expresión del tipo:

$$\psi(r, t) = \sum_{n=1}^{\infty} z_k(t) \Psi_n(r) \quad (2.8)$$

donde $z_k(t)$ son los coeficientes temporales y $\Psi_n(r)$ son los modos espaciales, que se calculan a partir de las autofunciones del operador laplaciano [9]:

$$\nabla^2 \Psi_n(r) + \lambda_n^2 \Psi_n(r) = 0 \quad (2.9)$$

siendo λ_n los autovalores.

La solución a la Ecuación (2.9) está dada por $\Psi_n(r) = (2\pi a)^{-1/2} \sin(\lambda_n r)/r$ con $\lambda_n = n\pi/a$ [9], mientras que el cálculo de los coeficientes temporales $z_k(t)$ se realiza de acuerdo a distintas aproximaciones dependiendo del algoritmo, tomando un número finito de términos en la sumatoria de la Ecuación (2.8). La ventaja de este enfoque es que permite aproximar la dependencia espacial de la solución para condiciones variables a partir de la solución con condiciones constantes, que se conoce analíticamente. De esta manera, se evita realizar una discretización espacial, lo cual permite un menor costo computacional en relación a otros métodos tales como el de diferencias finitas [14].

En la Figura 2.2 se muestran dos casos de resolución de la ecuación de difusión para dos historias de potencia; por un lado, en (a) se considera una historia de potencia constante a 1000 °C y 8.1×10^{18} fisiones/m³s, y por otro lado, en (b) se tiene una historia de potencia que varía en el tiempo, alternando pasos de tiempo donde la tasa de fisiones y la temperatura se mantienen constantes con pasos de tiempo donde estas variables aumentan de manera lineal. Cada paso de tiempo es dividido en 1000 sub-pasos para realizar la resolución de la ecuación diferencial. La resolución de la ecuación promediada espacialmente da la evolución temporal de la concentración total $\bar{\psi}(t)$, y se muestran en las figuras (c) y (d) para las historias de potencia constante y variables, respectivamente. En estos gráficos se muestra tanto la resolución obtenida mediante el método de referencia, así como también la resolución obtenida mediante los distintos métodos numéricos. Para el caso constante, la referencia está dada por la Ecuación (2.7), de la cual se toman 100000 términos de la sumatoria infinita. Para el caso variable, se utiliza la herramienta para resolución de ecuaciones diferenciales en derivadas parciales `pdepe` incorporada en la plataforma MATLAB⁴, considerando una malla espacial de 500 puntos en la dirección radial. Es importante destacar que, por cuestiones de claridad en la representación gráfica, sólo se muestran algunos puntos seleccionados de las soluciones numéricas. Como se puede observar, los tres algoritmos logran un buen acuerdo con la solución de referencia planteada para cada caso. Por otro lado, si se analiza el error relativo entre la solución de referencia y la solución numérica, se obtienen los gráficos (e) y (f) para condiciones constantes y

⁴`pdepe` resuelve la ecuación temporal utilizando la función `ode15s`, un solver de paso y orden variable (VSVO) basado en fórmulas de diferenciación numérica (NDFs) de orden 1 a 5 [26].

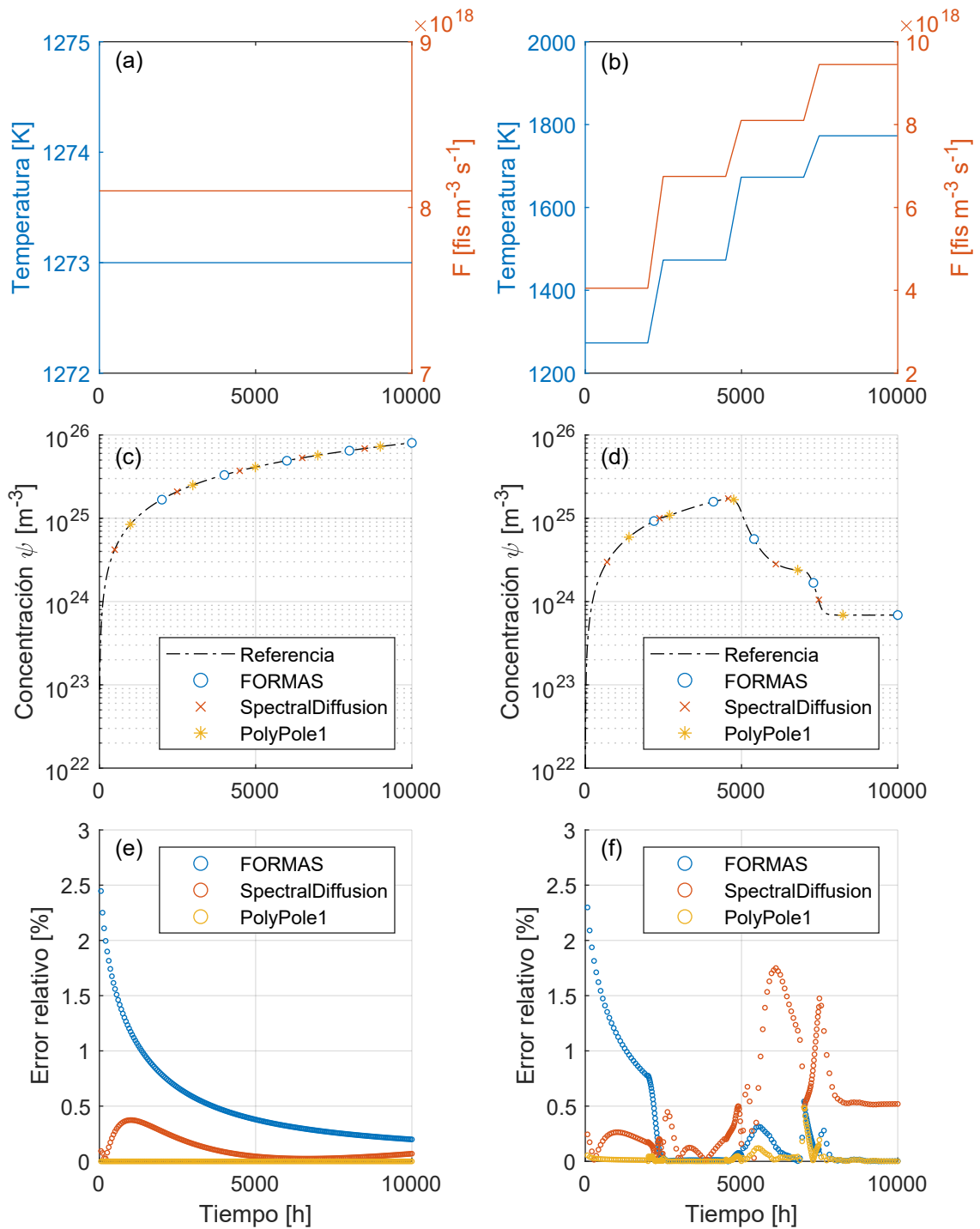


Figura 2.2: Historia de potencia con condiciones constantes (a) y variables en el tiempo (b), solución a la ecuación de difusión de acuerdo al algoritmo de referencia y a los métodos numéricos implementados para condiciones constantes (c) y variables (d), y error relativo entre el algoritmo de referencia y el método numérico para condiciones constantes (e) y variables (f).

variables, respectivamente. En primer lugar, se puede notar que el error relativo resulta ser menor al 3% en ambos casos. En el caso de la historia de potencia constante, el algoritmo FORMAS resulta ser el menos preciso, mientras que el algoritmo PolyPole1 no presenta diferencias con respecto a la solución analítica. Esto se debe a que el algoritmo PolyPole1 se reduce a la Ecuación (2.7) en condiciones constantes de temperatura y tasa de

fisiones [14]. Con respecto al caso de la historia de potencia variable, el comportamiento del error relativo resulta ser más complejo. Sin embargo, el algoritmo PolyPole1 sigue siendo el de mayor precisión.

Por último, para verificar el funcionamiento de los algoritmos frente a distintas historias de potencia, se realizó un experimento numérico similar a los reportados en las referencias [1, 14]. El experimento consiste en generar 500 historias de potencia de manera aleatoria. Cada historia de potencia consiste en pasos de tiempo donde tanto la temperatura como la tasa de fisiones varía de manera lineal, donde las siguientes variables son obtenidas de manera aleatoria a partir de una distribución uniforme:

- Número de pasos de tiempo: 1 a 7.
- Duración de cada paso de tiempo: 0.1 a 100 horas.
- Temperatura en cada paso de tiempo: 527 a 1927 °C.
- Tasa de fisiones en cada paso de tiempo: 0 a 3×10^{19} fisiones/m³s.
- Tamaño de grano: 10 a 30 μm.

Los rangos indicados para cada variable, basados en trabajos previos [1, 14], permiten simular un amplio rango de condiciones, incluyendo rampas de temperaturas similares a las que ocurren en caso de accidente. Luego, para cada historia de potencia aleatoria se calcula la liberación de gas (FGR) intragranular⁵ al final de la historia de potencia,

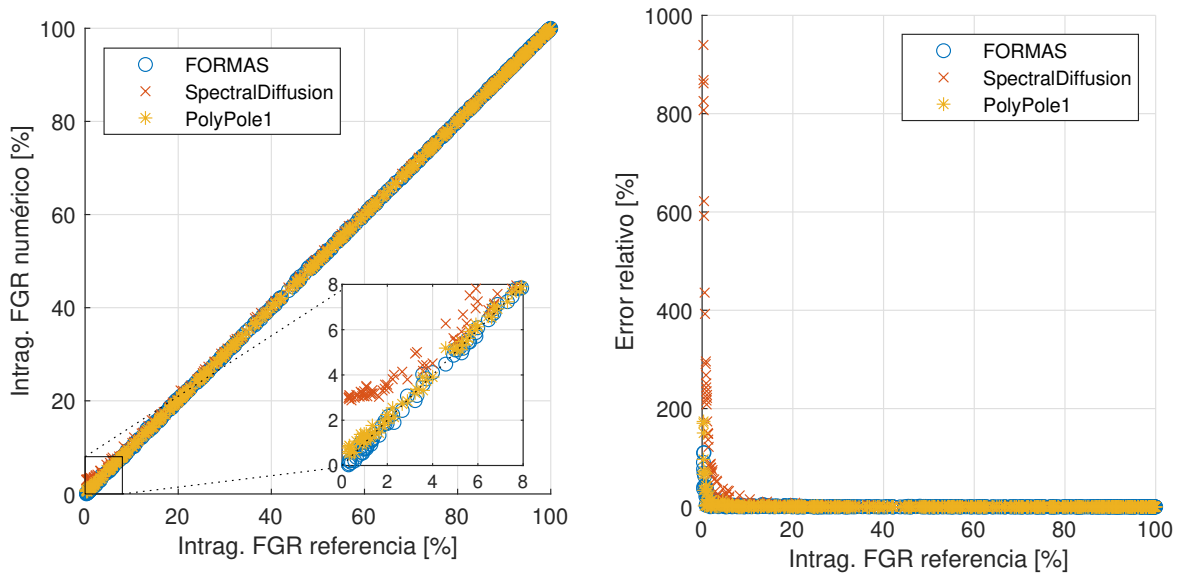


Figura 2.3: Comparación entre los valores de liberación de gas intragranular calculado mediante métodos numéricos y el algoritmo de referencia (izquierda) y error relativo calculado (derecha). Cada punto se corresponde con una historia de potencia generada aleatoriamente.

⁵El porcentaje de liberación de gas intragranular se calcula como:

$$\text{Intrag. FGR [\%]} = 100 \times \frac{\bar{\psi}_{\text{gen}} - \bar{\psi}}{\bar{\psi}_{\text{gen}}}$$

donde $\bar{\psi}_{\text{gen}}(t) = \int_0^t \beta dt$ es la concentración de átomos de gas producidos (m⁻³) y $\bar{\psi}(t) = \frac{\int_0^a \psi(r,t) 4\pi r^2 dr}{(4/3)\pi a^3}$ es la concentración de átomos de gas promediada sobre el volumen del grano (m⁻³).

y se utiliza este valor como criterio de evaluación en la comparación entre los métodos numéricos y la solución de referencia. En la Figura 2.3 se muestran los resultados para la liberación de gas obtenida mediante el algoritmo de referencia de diferencias finitas y los distintos métodos numéricos analizados. Como se puede observar, las historias de potencia generadas cubren aproximadamente todo el rango de FGR (de 0 a 100 % de liberación), y los tres métodos numéricos presentan en general un buen acuerdo con el algoritmo de referencia. Sin embargo, si se analiza en detalle el rango donde la liberación de gases es mínima (0 a 5 %, aproximadamente) se pueden observar desviaciones significativas en el algoritmo SpectralDiffusion. Esto se puede analizar de manera cuantitativa en el gráfico del error relativo, y se debe a que este algoritmo no cuenta con ninguna corrección para este rango de liberación mínima, mientras que los algoritmos PolyPole1 y FORMAS sí tienen en cuenta una corrección empírica. Esta corrección se construye de manera tal que, para condiciones constantes, se obtenga la solución exacta de la ecuación, y es aplicada en aquellos casos en los que la liberación de gases se mantiene por debajo del 5 % [1]. Por otra parte, se puede notar que, a partir del 5 % de liberación, el error relativo se mantiene por debajo del 5 % para todos los casos analizados.

Un aspecto fundamental en los métodos para resolver la ecuación de difusión es el tiempo computacional requerido para obtener la solución. Si se tiene en cuenta que el objetivo final del trabajo es la inclusión de este módulo al código de combustible DIONISIO, que funciona mediante el método de elementos finitos, la ecuación de difusión se debe resolver para cada nodo de la malla para cada instante de tiempo. De esta manera, se debe llegar a una relación de compromiso entre el esfuerzo computacional y la precisión requerida. En la Figura 2.4 se muestra el tiempo computacional que requiere cada historia de potencia generada de manera aleatoria para los distintos métodos numéricos analizados. Como se

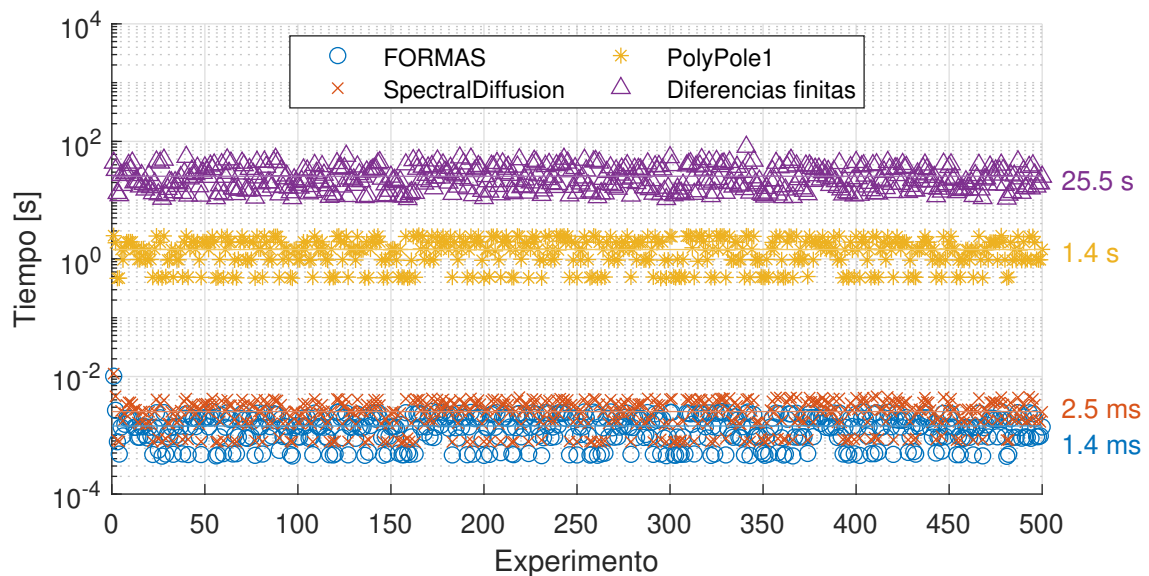


Figura 2.4: Tiempo computacional requerido por cada historia de potencia aleatoria para los distintos algoritmos de resolución de la ecuación de difusión. A la derecha del gráfico se muestra el promedio de todos los experimentos.

puede observar, el algoritmo PolyPole1 logra una reducción de un orden de magnitud con respecto al algoritmo de referencia, mientras que los métodos FORMAS y Spectral-Diffusion logran una reducción de más de cuatro órdenes de magnitud. Esto representa una diferencia muy significativa con respecto a la mínima pérdida de precisión discutida previamente, sobre todo teniendo en cuenta los valores de incertidumbre presentes en los parámetros involucrados en la ecuación; a modo de ejemplo, Pastore et al. [27] establecen una incertidumbre de hasta dos órdenes de magnitud en el coeficiente de difusión, lo cual representa una fuente de incertidumbre mucho mayor que el esquema numérico utilizado para la resolución de la ecuación de difusión.

Evolución de la población de burbujas intragranulares

En cuanto a la evolución temporal de la concentración de burbujas intragranulares, el modelo asume que las burbujas se forman a una determinada tasa de nucleación, y que se destruyen debido al fenómeno de re-disolución. Luego, la concentración de burbujas intragranulares N_{ig} (m^{-3}) está dada por:

$$\frac{d}{dt}N_{ig} = \nu - b \cdot N_{ig} \quad (2.10)$$

donde ν es la tasa de nucleación de burbujas ($\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$).

Para el cálculo del radio de las burbujas intragranulares, se supone que las burbujas contienen únicamente átomos de gas, ignorando la absorción de vacancias. Esta suposición está en línea con el modelo propuesto por Pizzocri et al. [8], quienes plantean que el pequeño tamaño de las burbujas (contienen menos de 30 átomos de gas, aproximadamente [28]) hace que la tensión superficial sea lo suficientemente grande como para mantener la densidad del gas cercana a la del Xenón sólido. Esta sobre-presurización de las burbujas intragranulares fue corroborada experimentalmente por varios autores [3, 29, 30]. Luego, teniendo en cuenta que la densidad del gas dentro de las burbujas se mantiene constante, existirán m/N_{ig} átomos de gas en cada burbuja. Considerando burbujas esféricas, el radio R_{ig} (m) se puede expresar como:

$$R_{ig} = \left(\frac{3\Omega}{4\pi} \frac{m}{N_{ig}} \right)^{1/3} \quad (2.11)$$

siendo Ω el volumen atómico que ocupa el gas en la red. De acuerdo a Matzke [31, 32], los átomos de gas en la red de UO_2 se ubican en complejos de defectos eléctricamente neutros denominados tríos de Schottky, y que se corresponden con una vacancia de uranio y dos vacancias de oxígeno. Luego, considerando que en el UO_2 los átomos de uranio forman una subred con estructura cúbica centrada en las caras (FCC), con un parámetro de red a temperatura ambiente de 0.547 nm, y si se tiene en cuenta que hay cuatro átomos en una celda unidad de estructura FCC, se obtiene que el volumen atómico promedio en el UO_2 es de $\Omega = 0.0409 \text{ nm}^3$.

Finalmente, con el radio R_{ig} y la concentración N_{ig} de burbujas intragranulares es posible calcular el hinchamiento. Si se considera un volumen de combustible V_s al cual se le introducen un cierto número de burbujas (n'_{ig}) de radio R_{ig} , el volumen final será:

$$V_f = V_s + \frac{4}{3}\pi R_{ig}^3 n'_{ig} = V_s \left(1 + \frac{4}{3}\pi R_{ig}^3 N'_{ig} \right) \quad (2.12)$$

en donde N'_{ig} es la concentración de burbujas por unidad de volumen de combustible sin burbujas. Sin embargo, las medidas experimentales determinan la concentración respecto al volumen total (N_{ig}), es decir, de volumen sólido y de gases acumulados. Se puede demostrar sencillamente que la relación entre estas cantidades es:

$$N'_{ig} = \frac{N_{ig}}{1 - (4\pi R_{ig}^3/3)N_{ig}} \quad (2.13)$$

Entonces, el hinchamiento fraccional es:

$$\left(\frac{\Delta V}{V} \right) = \left(\frac{4\pi R_{ig}^3}{3} \right) N'_{ig} = \frac{(4\pi R_{ig}^3/3)N_{ig}}{1 - (4\pi R_{ig}^3/3)N_{ig}} \quad (2.14)$$

Si el hinchamiento es pequeño, la ecuación se puede simplificar como:

$$\left(\frac{\Delta V}{V} \right)_{intragranular} = \left(\frac{4\pi R_{ig}^3}{3} \right) N_{ig} \quad (2.15)$$

2.1.1. Coeficiente de difusión

El coeficiente de difusión D es uno de los parámetros más importantes necesarios para describir el comportamiento de los gases de fisión en cualquier código de simulación de combustibles. En esta sección se considerará el coeficiente de difusión en volumen (es decir, alejado de burbujas y bordes de grano) del Xenón en la matriz de UO_2 , ya que es el producto más preponderante en los eventos de fisión nuclear (ver Sección 2.1.3) y se lo puede considerar representativo de todos los gases de fisión.

La difusión de átomos de gas en la matriz de UO_2 es un proceso complejo que puede involucrar varios mecanismos de migración, y que resulta ser dependiente de la temperatura, la tasa de fisiones, la estequiometría y el quemado [33]. En la Figura 2.5 se muestran los coeficientes de difusión del Xe en la matriz de UO_2 presentados por distintos autores de la literatura.

Uno de los primeros trabajos para determinar el coeficiente de difusión experimentalmente fue realizado por Davies y Long [34] en 1963. El método experimental consistía en realizar recocidos en muestras de UO_2 previamente irradiadas, para luego medir el contenido de Xe-133 presente en el gas liberado. Luego, utilizando las ecuaciones de difusión apropiadas a las condiciones experimentales, se puede obtener el coeficiente de difusión a partir de la fracción liberada f , ya que $f \propto \sqrt{Dt/\pi}$. Algunos años más tarde, Cornell

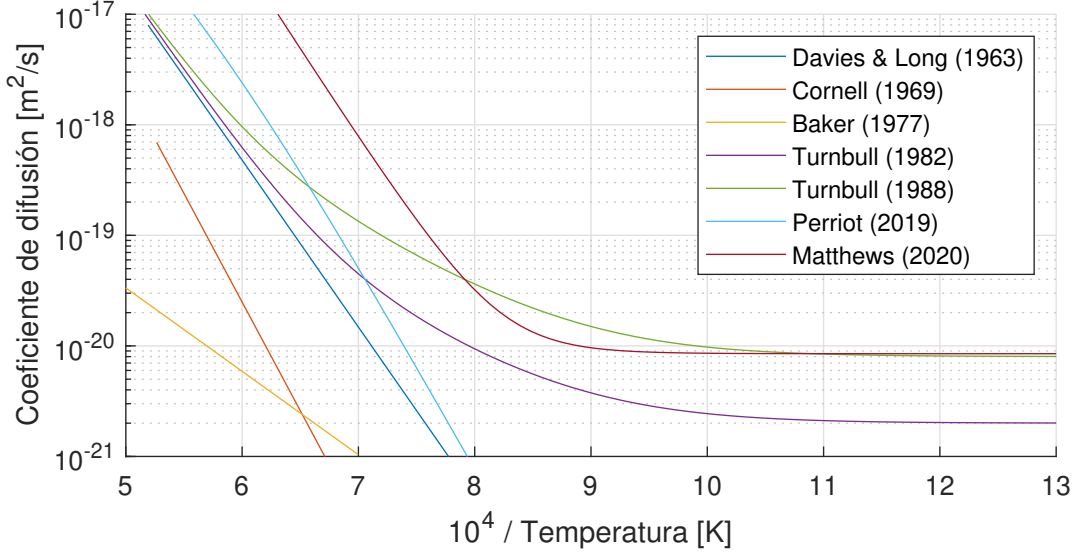


Figura 2.5: Coeficiente de difusión del Xe en la matriz de UO_2 . Se considera una tasa de fisiones constante de $\dot{F} = 1 \times 10^{19}$ fis $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$.

et al. [35] y Baker [30] utilizan un método analítico para correlacionar el coeficiente de difusión con la cinética de crecimiento de las burbujas de gas, cuya evolución luego de la irradiación fue observada mediante técnicas de microscopía electrónica.

En 1982, Turnbull et al. [36] realizan nuevas mediciones experimentales en muestras de UO_2 monocristalinas y policristalinas, con una metodología similar a la de Davies y Long pero en un rango de temperaturas extendido. En este trabajo se describe al coeficiente de difusión como la suma de tres términos que caracterizan diferentes mecanismos de migración para los distintos rangos de temperatura. La expresión obtenida para el coeficiente de difusión D es de la forma:

$$D(T, \dot{F}) = D_1(T) + D_2(T, \dot{F}) + D_3(\dot{F}) \quad (2.16)$$

donde T es la temperatura, \dot{F} es la tasa de fisiones, y:

- D_1 o coeficiente de difusión intrínseco: Este término es dominante para temperaturas altas, $T > 1200^\circ\text{C}$. Se corresponde con un mecanismo térmicamente activado, mediante el cual los átomos de Xe difunden a partir de complejos de vacancias (tríos de Schottky, conformados por una vacancia de U y dos de O). Por lo tanto, se lo puede expresar mediante una ecuación del tipo Arrhenius:

$$D_1(T) = D_{01} \exp(-\Delta H_1/k_B T) \quad (2.17)$$

donde ΔH_1 es la entalpía de difusión y D_{01} es la constante de difusión.

- D_2 o coeficiente de difusión aumentado: Este término es dominante a temperaturas intermedias, $800^\circ\text{C} < T < 1200^\circ\text{C}$. En este caso, la concentración de defectos puntuales está controlada parcialmente por la tasa de fisiones \dot{F} . De esta manera,

la difusión se encuentra aumentada por la sobresaturación de vacancias. Turnbull et al. [36] estudian este mecanismo mediante un modelo de camino aleatorio (*random walk*), obteniendo la siguiente expresión:

$$D_2(T, \dot{F}) = s^2 j_v C_v^0 \quad (2.18)$$

siendo s la distancia del salto, j_v la frecuencia de saltos y C_v^0 la concentración de vacancias inducidas por irradiación. Se puede consultar la referencia [36] donde se realiza un análisis detallado de cada uno de estos parámetros. Esta misma formulación es empleada por Denis y Piotrkowski [37] en su modelo. Por otra parte, esta expresión puede ser simplificada a una ecuación del tipo Arrhenius, con una energía de migración equivalente de defectos ΔH_2 [38]:

$$D_2(T, \dot{F}) = D_{02} \sqrt{\dot{F}} \exp(-\Delta H_2/k_B T) \quad (2.19)$$

- D_3 o coeficiente de difusión atómico: Este término es dominante para temperaturas bajas, $T < 800^\circ\text{C}$. En este caso, los saltos térmicamente activados pasan a ser despreciables, y la difusión ocurre mediante cascadas de colisiones atómicas. La expresión propuesta para este mecanismo es:

$$D_3(\dot{F}) = D_{03} \dot{F} \quad (2.20)$$

donde D_{03} es una constante de proporcionalidad que se determina experimentalmente a partir de muestras irradiadas a bajas temperaturas.

En 1988, Turnbull et al. [39] hacen una revisión del modelo, donde se realiza la siguiente modificación a la Ecuación (2.16):

$$D(T, F) = D_1(T) + 4D_2(T, F) + 4D_3(F) \quad (2.21)$$

donde los parámetros D_1 , D_2 y D_3 retienen el mismo significado que en la formulación original. La corrección se debe a una inconsistencia que se encontró posteriormente en la tasa de generación de los productos de fisión gaseosos que tienen una vida media corta, lo cual hace incrementar D_2 y D_3 en un factor de 4. Es importante destacar que este modelo para el coeficiente de difusión, compuesto por tres términos, es utilizado actualmente en la mayoría de los códigos de combustible [40].

En los últimos años, el avance en las técnicas computacionales permitieron la utilización de modelos atomísticos para el cálculo del coeficiente de difusión, mediante la aplicación de potenciales empíricos (EP) o la teoría del funcional de la densidad (DFT). Ante la complejidad que supone la realización de experimentos en combustibles irradiados, estas metodologías pasan a jugar un rol fundamental en la investigación del comportamiento de los productos de fisión. Una vez validados estos modelos con resultados experimentales,

pueden ser utilizados para estudiar nuevos combustibles (como por ejemplo, UO_2 dopado), para considerar otras condiciones de operación, o para extrapolar la información más allá de los datos experimentales.

En 2019, Perriot et al. [41] logran reproducir el coeficiente de difusión intrínseco D_1 , preponderante para altas temperaturas. Este estudio encuentra que los complejos de defectos con mayor concentración son los Xe_{UO} y $\text{Xe}_{\text{U}_2\text{O}}$ (una vacancia de uranio y una de oxígeno, y dos de uranio y una de oxígeno, respectivamente); sin embargo, la difusión intrínseca se debe mayoritariamente a los complejos de vacancias $\text{Xe}_{\text{U}_2\text{O}}$. En 2020, Matthews et al. [42] extienden este estudio para considerar el coeficiente aumentado D_2 , de vital importancia debido a que este rango de temperatura se corresponde a las condiciones nominales de operación en combustibles de UO_2 . Utilizando un novedoso método de dinámica de aglomerados (*clusters*), encuentran que el mecanismo de difusión en estas temperaturas intermedias se corresponde con complejos de defectos del tipo $\text{Xe}_{\text{U}_4\text{O}_y}$, que aumentan su concentración bajo irradiación debido a la producción de pares de Frenkel⁶. Empleando el valor del coeficiente atómico D_3 dado por Turnbull [39], logran obtener una expresión de la misma forma que la Ecuación (2.16), permitiendo la implementación en códigos de combustible.

Para las simulaciones realizadas en este trabajo de tesis se decidió utilizar el coeficiente de difusión revisado de Turnbull, en base a la gran cantidad de trabajos presentes en la literatura que utilizan este modelo [37, 43-46], así como también para ser consistente con otros modelos que utilizan este parámetro dentro del código DIONISIO. Los factores pre-exponenciales y energías de activación correspondientes se muestran en la Tabla 2.1.

Tabla 2.1: Parámetros para reproducir el coeficiente de difusión revisado de Turnbull [39].

D_{01}	ΔH_1	D_{02}	ΔH_2	D_{03}
7.60×10^{-10}	3.04 eV	1.41×10^{-25}	1.19 eV	2.00×10^{-40}

2.1.2. Tasa de nucleación de burbujas

El fenómeno de nucleación consiste en la formación de aglomerados estables de átomos de gas de fisión (núcleos), que luego crecerán y formarán las burbujas intragranulares. Olander [47] distingue dos posibles mecanismos de nucleación:

- Nucleación heterogénea: Las burbujas nuclean como consecuencia directa de la interacción de los fragmentos de fisión con la red, es decir, la nucleación está controlada por la irradiación. En este caso, los fragmentos de fisión crean desplazamientos en la red a lo largo de su recorrido, formando pequeños embriones compuestos por vacancias que luego serán ocupados por los átomos de gas para formar las burbujas propiamente dichas.

⁶Un “par de Frenkel” o “defecto Frenkel” es un tipo de defecto puntual en una red cristalina que se forma cuando un átomo o ion más pequeño (usualmente un catión) deja su lugar en la red, creando una vacante y alojándose en un sitio intersticial cercano.

- Nucleación homogénea: Las burbujas nuclean debido a la interacción de los átomos de gas disueltos que migran por la red. Estos átomos, al encontrarse, forman dímeros que luego pueden crecer al capturar átomos de la red. Este proceso está controlado por difusión.

Evidencia experimental obtenida mediante microscopía electrónica de transmisión permite observar a las burbujas intragranulares alineadas en líneas rectas, como se muestra en la Figura 2.6. Esto llevó a Turnbull [29] a concluir que el mecanismo de nucleación predominante era el heterogéneo. Sin embargo, otros trabajos no mostraban este comportamiento de las burbujas, indicando que estaba en funcionamiento el mecanismo homogéneo [28]. En general, se puede asumir que ambos mecanismos están activos en el grano, pero la mayoría de los trabajos experimentales y teóricos concluyen que el mecanismo dominante es el heterogéneo [8].

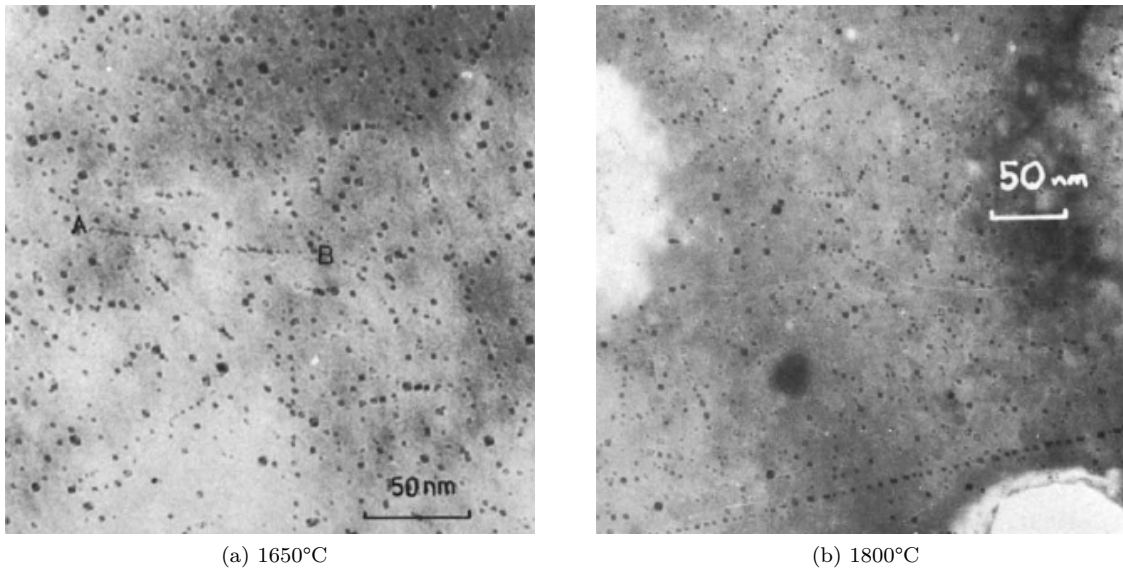


Figura 2.6: Micrografías obtenidas por Baker [30] mediante microscopía electrónica de transmisión (TEM), donde se observan las burbujas intragranulares dispuestas en forma de líneas rectas.

Teniendo en cuenta esto, se decidió contemplar en el modelo únicamente el mecanismo de nucleación heterogéneo. La tasa de nucleación ν ($\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$) está dada por:

$$\nu = 2 \cdot \eta \cdot \dot{F} \quad (2.22)$$

donde η es el número de burbujas que nuclea por cada fragmento de fisión, \dot{F} es la tasa de fisiones ($\text{fisiones m}^{-3} \text{s}^{-1}$) y el factor 2 tiene en cuenta el número de fragmentos de fisión generados en cada evento de fisión.

Con respecto al número de burbujas que nuclean por cada fragmento de fisión η , distintos autores ubican su valor entre 5 y 100, basados en observaciones experimentales. Los valores típicos utilizados en los códigos de cálculo rondan entre 10 y 25 burbujas nucleadas por fragmento de fisión [28, 37]. Como nota adicional, Losonen [33] propone considerar

una dependencia de este parámetro con la temperatura, $\eta = \eta(T)$. Si bien no hay evidencia experimental directa de esta dependencia, se puede dar una explicación cualitativa: a bajas temperaturas, el número de burbujas que nuclean por cada fragmento de fisión será mayor, ya que la movilidad de los átomos es menor, haciendo que los aglomerados de vacancias que forman los embriones tengan más tiempo para estabilizarse y transformarse en burbujas. Mediante un ajuste realizado con datos experimentales, Losonen obtiene la siguiente expresión para η :

$$\eta(T) = 35.498 - 0.0116 \cdot T \quad (2.23)$$

siendo T la temperatura (K). En la Tabla 2.2 se puede observar la dependencia del número de burbujas nucleadas por fragmento de fisión con la temperatura haciendo uso de la Ecuación (2.23). Como se puede notar, los valores obtenidos se encuentran dentro del rango de valores experimentales mencionado previamente. Sin embargo, Losonen basa su análisis en la suposición de que la tasa de re-disolución no depende del radio de las burbujas. En este trabajo se utiliza un modelo que tiene en cuenta la dependencia de este parámetro con el radio de las burbujas intragranulares (ver Sección 2.1.5), con lo cual la dependencia de η con la temperatura deja de ser significativa. Por esta razón, en este trabajo no se considera este modelo de Losonen, sino que el número de burbujas que nuclean por fragmento de fisión se mantiene constante con la temperatura.

Para determinar el valor a utilizar en este modelo, se realizó la simulación del radio de

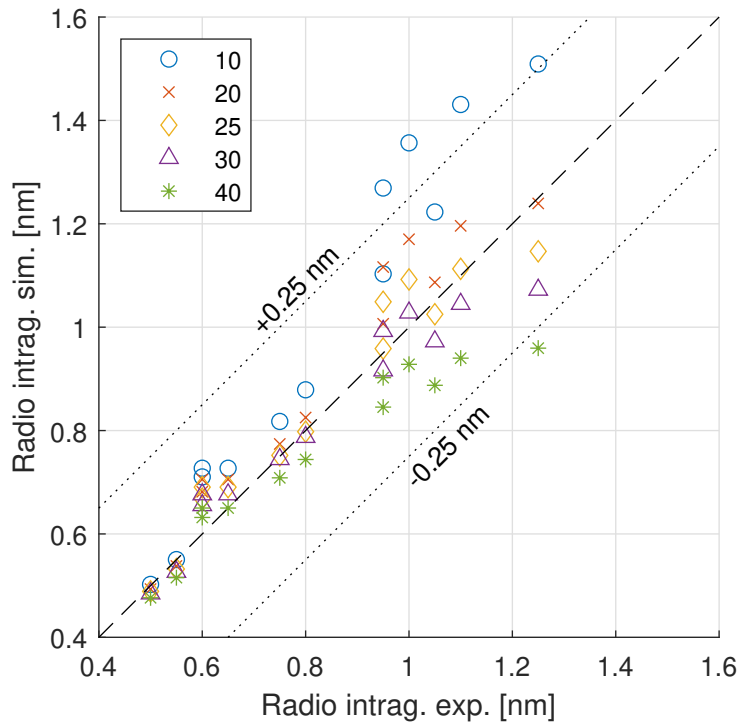


Figura 2.7: Simulación del radio de las burbujas intragranulares para distintos valores de burbujas nucleadas por fragmento de fisión. Los datos simulados se comparan con los datos experimentales de Baker [30].

Tabla 2.2: Número de burbujas que nuclean por cada fragmento de fisión de acuerdo al modelo de Losonen [33].

Temperatura (°C)	η
1000	20.7
1100	19.6
1200	18.4
1300	17.3
1400	16.1
1500	14.9
1600	13.8
1700	12.6
1800	11.5

las burbujas intragranulares obtenido a partir de los datos experimentales de Baker [30] para distintos valores de η , variando este parámetro entre 10 y 40 burbujas nucleadas por fragmento de fisión. Los resultados se muestran en la Figura 2.7. A partir de un análisis estadístico mediante el coeficiente de correlación de concordancia de Lin, se determina que con $\eta = 25$ burbujas nucleadas por fragmento de fisión se obtiene el mejor ajuste a los datos experimentales. Un análisis más detallado del test estadístico utilizado se puede encontrar en la Sección 5.1. En la figura mencionada se puede observar, además, que la variación del factor η resulta menos significativa para radios de burbujas menores que 0.9 nm que para aquellas que toman valores mayores. Esta separación de comportamiento, que ocurre a 1400 °C aproximadamente, podría dar cuenta de que actúan diferentes mecanismos de nucleación dependiendo de la temperatura.

Es importante destacar las limitaciones de este modelo. En primer lugar, como se mencionó previamente, no se tiene en cuenta el mecanismo de nucleación homogénea. En segundo lugar, de acuerdo a Olander y Wongsawaeng [28], es posible que no todos los fragmentos de fisión sean capaces de nuclear burbujas. Por ejemplo, aquellos fragmentos más livianos perderán una mayor parte de su energía debido al frenado electrónico que los fragmentos más pesados, haciendo que disminuya el valor de η . Por último, los mismos autores plantean que es posible que tanto el tamaño como el número de burbujas nucleadas por fragmento de fisión incrementen con la concentración de gas disuelto.

2.1.3. Tasa de producción de gas

En un evento de fisión nuclear, el núcleo de un átomo pesado se divide en dos (o más) núcleos más pequeños, liberando gran cantidad de energía. Estos núcleos más pequeños se denominan productos de fisión. Para el estudio del hinchamiento y la liberación de gases de fisión, los productos de fisión que interesan son los isótopos estables (o con una vida media muy larga en relación al tiempo de irradiación en el reactor) de Xe y Kr que resultan de la fisión de los núcleos de ^{235}U a partir de neutrones térmicos, es decir, neutrones cuya energía cinética es de alrededor de 0.025 eV. Aquellos isótopos con una vida media muy corta decaerán como productos sólidos de fisión en la escala de tiempo de operación del reactor. Los gases de fisión Xe y Kr son los elementos gaseosos más

abundantes creados en combustibles de UO_2 , con un rendimiento⁷ total de alrededor de 0.3 átomos por cada fisión. A modo de ejemplo, de todos los productos de fisión creados en un elemento combustible que ha alcanzado un quemado de 45 GWd/tU, el 12.7 wt % se corresponde con átomos de Xe mientras que el 1.1 wt % se corresponde a átomos de Kr. Como criterio general, se acepta que de todos los gases de fisión formados, el 10 % corresponde a Kr y el 90 % a Xe [48].

En la Tabla 2.3 se muestran los isótopos estables de Xe y Kr que se liberan en cada evento de fisión. Por otra parte, se debe tener en cuenta el caso especial del isótopo ^{135}Kr que, a pesar de tener una vida media muy corta (9.1 horas), puede transmutar muy fácilmente en ^{136}Kr mediante la captura de neutrones térmicos, debido a su altísima sección transversal de captura [48]. Esto hace que aumente el rendimiento total, hasta alcanzar un valor aproximado al mencionado previamente, de 0.3 átomos de gas por evento de fisión.

Tabla 2.3: Isótopos de Xe y Kr liberados por fisión, de acuerdo a Tonks et al. [49].

Isótopo	Vida media	Rendimiento [%]
^{83}Kr	Estable	0.54
^{84}Kr	Estable	1.00
^{85}Kr	Estable (10.78 años)	0.29
^{86}Kr	Estable	2.02
Rendimiento total de Kr estable		3.85
^{129}Xe	Estable	0.80
^{131}Xe	Estable	2.93
^{132}Xe	Estable	4.38
^{134}Xe	Estable	8.06
^{136}Xe	Estable (2.11×10^{21} años)	6.46
Rendimiento total de Xe estable		22.63

Por último, asumiendo que la distribución de fisiones es homogénea en todo el grano y que el rendimiento es independiente del tiempo de irradiación, se puede obtener la tasa de producción de gases de fisión como:

$$\beta = Y \cdot \dot{F} \quad (2.24)$$

siendo Y la fracción de rendimiento total y \dot{F} la tasa de fisiones (fisiones $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$).

2.1.4. Tasa de atrapamiento

Luego de la nucleación, las burbujas incrementan su tamaño mediante el atrapamiento de átomos de gas disueltos que se encuentran difundiendo en el material. Este fenómeno fue estudiado por Ham [50], quien plantea las ecuaciones de difusión en geometría esférica considerando a las burbujas como sumideros esféricos de radio r que se encuentran en un “volumen de captura” de radio R (es decir, la matriz con átomos de gas fisión disueltos que son creados a una determinada tasa de generación uniforme), como se muestra en la

⁷Se define al rendimiento como la fracción de un producto de fisión que se produce en cada fisión.

Figura 2.8. Una simplificación adicional que considera en este análisis es que radio de las burbujas es pequeño comparado con la distancia que las separa.

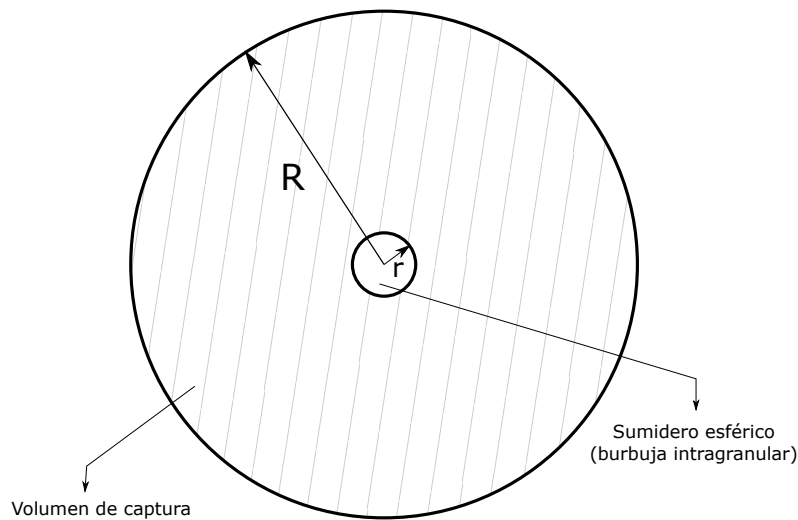


Figura 2.8: Geometría del problema de difusión resuelto por Ham [50] para el cálculo de la tasa de atrapamiento.

De esta manera, Ham deduce que la tasa de atrapamiento g (s^{-1}), que se puede pensar como la probabilidad por unidad de tiempo de que un átomo de gas disuelto sea capturado por una burbuja, está dada por:

$$g = 4\pi D(R_{ig} + R_{at})N_{ig} \quad (2.25)$$

siendo D el coeficiente de difusión ($m^2 s^{-1}$), R_{ig} el radio de las burbujas intragranulares (m), R_{at} el radio de un átomo de gas en la red (m) y N_{ig} la concentración de las burbujas intragranulares (m^{-3}). Es importante destacar que en el combustible existen otros tipos de defectos que disminuyen la cantidad de átomos de gas disponibles para difundir mediante mecanismos de atrapamiento, ya sea de manera temporaria o permanente. Estos defectos pueden ser tanto propios del combustible (tales como impurezas, dislocaciones, poros, etc.) como producidos por el fenómeno de irradiación (aglomerados de vacancias sobre los caminos de fisión, precipitados de productos sólidos, etc.). Sin embargo, evidencia experimental indica que el mecanismo predominante para los quemados característicos de los reactores de potencia es el atrapamiento debido a las burbujas intragranulares [10], con lo cual no son tenidos en cuenta en el modelo.

2.1.5. Tasa de re-disolución

La re-disolución es el fenómeno mediante el cual los átomos de gas que se encuentran dentro de las burbujas son devueltos a la matriz debido a la irradiación. De esta manera, la re-disolución actúa a favor del hinchamiento intergranular y la liberación de gases de fisión (ya que los átomos dispersos pueden difundir al borde de grano y pasar a formar parte de burbujas intergranulares o escapar), pero en oposición al hinchamiento intragranular (ya

que se reduce la cantidad de gas presente en las burbujas intragranulares).

Como se mencionó previamente, la solubilidad termodinámica de los gases de fisión en la matriz del combustible es muy baja. Sin embargo, el fenómeno de re-disolución hace que la solubilidad sea no nula, ya que la irradiación previene la completa precipitación de átomos de gas en burbujas, haciendo posible que átomos de gas se mantengan en solución en concentraciones que se encuentran por encima del límite de solubilidad termodinámico. Este tipo de solubilidad se denomina “solubilidad dinámica” [47].

Olander y Wongsawaeng [28] distinguen dos posibles mecanismos de re-disolución:

- Re-disolución heterogénea: Las burbujas son destruidas completamente por los fragmentos de fisión que las atraviesan o que pasan cerca, dentro de un determinado rango de influencia Z_0 .
- Re-disolución homogénea: Las burbujas van perdiendo átomos de gas gradualmente, a lo largo del tiempo, debido a colisiones de dispersión con fragmentos de fisión.

En línea con el modelo propuesto por Pizzocri et al. [8], en el presente trabajo se considera como mecanismo predominante al mecanismo de re-disolución heterogéneo. Esta elección se basa en trabajos realizados mediante dinámica molecular, donde se estudian ambos mecanismos de re-disolución, concluyendo que el mecanismo heterogéneo prevalece sobre el mecanismo homogéneo [51].

El mecanismo heterogéneo fue estudiado por Turnbull [29], quien propone que, para que sea tocado por un fragmento de fisión, el centro de la burbuja intragranular debe encontrarse dentro de un radio $R_{ig} + Z_0$ del eje del camino del fragmento de fisión (ver Figura 2.9). Luego, la tasa de re-disolución se puede obtener haciendo una analogía con el daño por radiación en metales, donde la tasa de desplazamientos por átomo (dpa) está dada por el producto entre la sección transversal de desplazamientos y el flujo de neutrones rápidos. En el caso de la re-disolución, se puede obtener como el producto entre la sección transversal del fragmento de fisión y las burbujas $\pi(R_{ig} + Z_0)^2$ y el flujo de fragmentos de fisión $2\dot{F}l_f$.

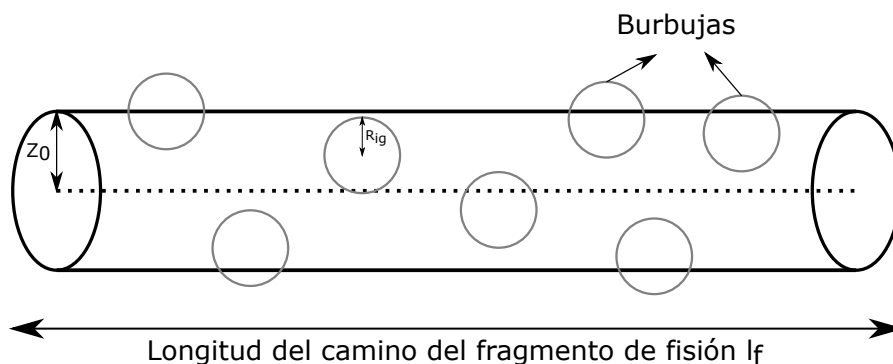


Figura 2.9: Diagrama para el cálculo de la tasa de re-disolución. Adaptado de Olander [47].

De esta manera, se deduce que la tasa de re-disolución b (s^{-1}), que se puede pensar como la probabilidad por unidad de tiempo de que una burbuja sea destruída, está dada

por:

$$b = 2\pi\dot{F}l_f(R_{ig} + Z_0)^2 \quad (2.26)$$

donde \dot{F} es la tasa de fisiones (fisiones $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$), l_f es la longitud del camino de un fragmento de fisión (m), R_{ig} el radio de las burbujas intragranulares (m), y Z_0 es el radio de influencia del camino de un fragmento de fisión (m). Los valores típicos utilizados para la longitud y el radio de influencia del camino de un fragmento de fisión son $l_f = 6 \mu\text{m}$ y $Z_0 = 1 \text{ nm}$ [37].

2.2. Resultados

Con el objetivo de validar el modelo presentado en las secciones anteriores, se realizó una búsqueda bibliográfica de datos experimentales que contemplen la población de burbujas intragranulares en distintas condiciones de reactor (es decir, distintas temperaturas, quemados, etc.). En la Sección 2.2.1 se realizará una breve descripción de la base de datos experimental utilizada, citando las características más importantes de cada trabajo. Luego, en la Sección 2.2.2 se contrastan los resultados obtenidos mediante el modelo implementado con los resultados experimentales.

2.2.1. Datos experimentales

En 1971, Cornell [2] realiza un estudio experimental de la población de burbujas intragranulares en reactores del tipo AGR (*Advanced Gas-cooled Reactor*), considerando un rango de temperaturas de entre 700 y 1600 °C. La irradiación fue realizada en el reactor AGR Windscale, creado y operado por la Autoridad para la Energía Atómica del Reino Unido (UKAEA). Las pastillas de dióxido de uranio fueron irradiadas a dosis de entre 3.2×10^{16} y 4.6×10^{17} fisiones/mm³.

En 1977, Baker [30] extiende los estudios de Cornell para un rango mayor de temperaturas, con el objetivo de estudiar la población de burbujas intragranulares en combustibles para reactores del tipo SGHWR (*Steam-Generating Heavy Water Reactor*), en los cuales es posible alcanzar temperaturas mayores a 1600 °C en la línea central de las barras combustibles. La irradiación fue realizada en el reactor SGHWR Winfrith, creado y operado por la UKAEA. Se utilizaron pastillas de dióxido de uranio, las cuales fueron irradiadas hasta alcanzar un quemado del 1 %, registrándose temperaturas de entre 400 y 2300 °C. Las burbujas fueron estudiadas mediante métodos de microscopía electrónica, tanto de transmisión (TEM) como de barrido (SEM), a partir de los cuales se obtuvo la concentración y el radio de burbujas intragranulares para cada valor de temperatura.

En 1993, Kashibe et al. [6] realizan una caracterización de la población de burbujas intragranulares en pastillas de dióxido de uranio que fueron irradiadas hasta alcanzar quemados de entre 6 y 44 GWd/t en un reactor del tipo BWR (*Boiling Water Reactor*) o 83 GWd/t en un reactor del tipo PWR (*Pressurized Water Reactor*). El tamaño y la concentración de burbujas fue analizado mediante TEM y SEM. Además, luego de la irradiación base también se hicieron distintos recocidos para analizar la variación de la morfología y concentración de las burbujas con la temperatura.

Es importante destacar que, en los trabajos en los cuales no se presenta una descripción detallada de la historia de potencia utilizada, se decidió considerar una historia de potencia constante a partir de los datos de temperatura y tasa de fisiones promedio dados por los autores.

2.2.2. Comparación con el modelo

Para contrastar los resultados del modelo con los datos experimentales discutidos en la sección previa, se buscó reproducir las mismas condiciones especificadas por los autores de los experimentos (en particular, la temperatura, la potencia lineal, el grado de quemado alcanzado, el tamaño de grano inicial y la densidad del combustible).

En la Figura 2.10 se puede observar la evolución de la concentración de burbujas intragranulares en función del quemado, para una temperatura de 1340 °C. Además, también se muestra el valor experimental obtenido por Baker al final del período de irradiación.

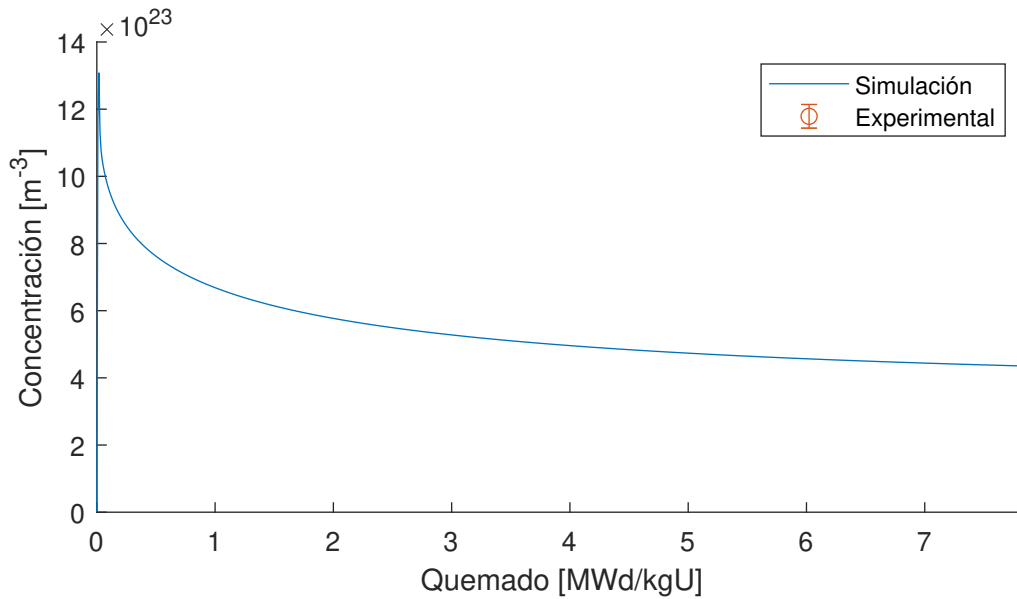


Figura 2.10: Evolución de la concentración de burbujas intragranulares con el quemado y comparación con el resultado experimental obtenido por Baker [30] para una temperatura de 1340 °C.

Como se puede observar, existe un incremento de la concentración de burbujas en un primer momento, lo cual se debe al fenómeno de nucleación. Luego de alcanzar un máximo, la concentración tiende a disminuir con el quemado. Este comportamiento se encuentra en línea con las observaciones experimentales de Kashibe et al. [6]. La evolución de la concentración se explica a partir de la Ecuación (2.10). Considerando que el paso de tiempo para este experimento particular es de 21186s, se tiene que la concentración máxima de burbujas alcanzada en el primer paso de tiempo es de 13.1×10^{23} burbujas/ m^3 . Luego, la concentración irá decayendo a medida que avance el quemado, debido a la influencia de la tasa de re-disolución b , que modela la destrucción de las burbujas debido a los fragmentos de fisión energéticos. Se puede notar que la concentración alcanza un valor asintótico, ya que si $dN_{ig}/dt \rightarrow 0$, se tiene que $N_{ig} \rightarrow \nu/b$, con lo cual se tiende a alcanzar un valor de equilibrio entre las burbujas que nuclean y las burbujas que son destruidas por los fragmentos de fisión.

En la Figura 2.11 se muestra la evolución del radio de las burbujas intragranulares en función del quemado, para una temperatura de 1340 °C. Además, también se muestra el

valor experimental obtenido por Baker al final del período de irradiación.

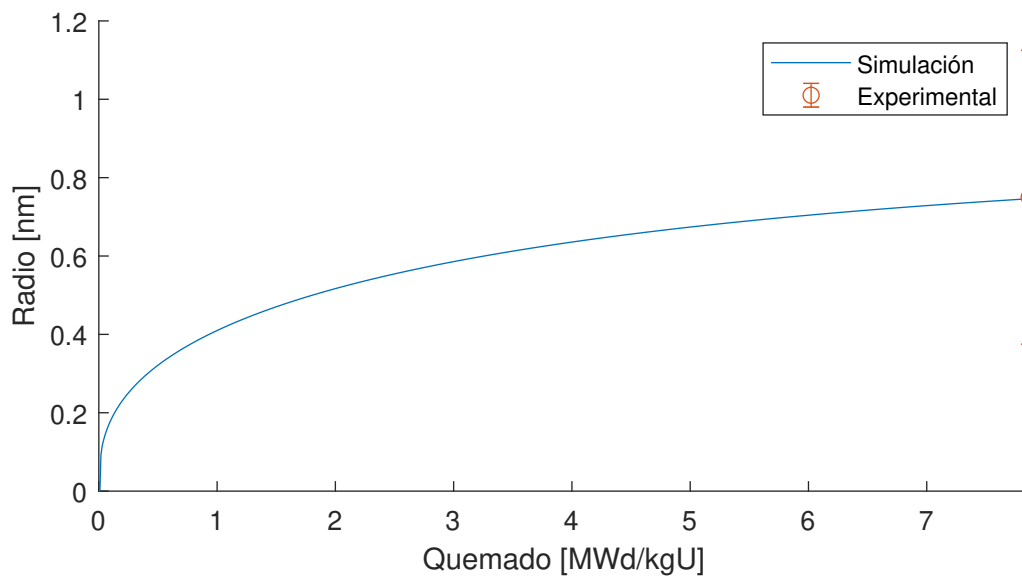


Figura 2.11: Evolución del radio de las burbujas intragranulares con el quemado y comparación con el resultado experimental obtenido por Baker [30] para una temperatura de 1340 °C.

En este caso se puede observar que el tamaño de las burbujas aumenta con el quemado debido al fenómeno de atrapamiento. Este comportamiento, observado también experimentalmente por Kashibe et al. [6] y Nogita et al. [52], puede explicarse a partir de la Ecuación (2.11). La evolución del número de átomos de gas que se encuentran en cada burbuja está dada por m/N_{ig} , siendo m la concentración de átomos de gas en las burbujas (en átomos/m³) y N_{ig} la concentración de burbujas (en burbujas/m³). Como se discutió previamente, la concentración de burbujas N_{ig} decrece con el quemado. Por otro lado, la concentración de átomos de gas en las burbujas m aumenta con el quemado. Esto se puede

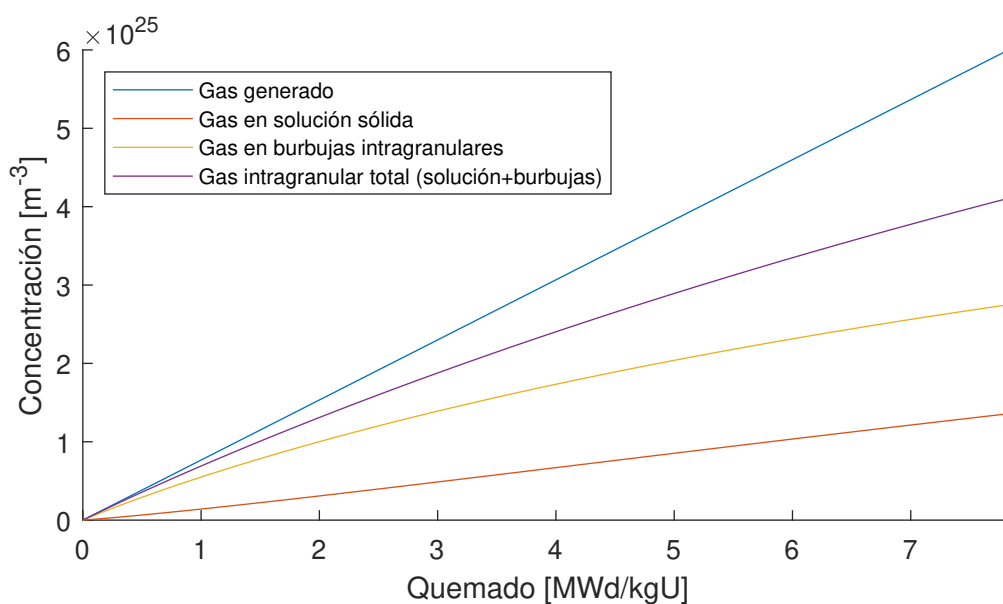


Figura 2.12: Concentración de átomos de gas en burbujas intragranulares y en solución sólida.

observar en la Figura 2.12, donde se tiene la concentración de gas generado debido a los eventos de fisión, y la concentración de gas que se encuentra en solución sólida y en burbujas intragranulares. Se puede notar que, en estas condiciones, la concentración de gas en solución sólida es menor a la concentración de gas en burbujas, y que ambas aumentan con el quemado. La diferencia entre la concentración de gas generado y la concentración de gas intragranular total (que tiene en cuenta tanto el gas en solución como el gas en burbujas) será la concentración de gas intergranular, es decir, son los átomos de gas que alcanzaron el borde de grano y se encuentran formando las burbujas intergranulares. Por otro lado, se puede notar que la producción de gas aumenta linealmente con el quemado, tal como lo indica la Ecuación (2.24).

En las Figuras 2.13 a 2.15 se muestra la comparación entre los datos experimentales y los valores obtenidos mediante el cálculo numérico para el radio y la concentración de burbujas, así como también del hinchamiento volumétrico intragranular.

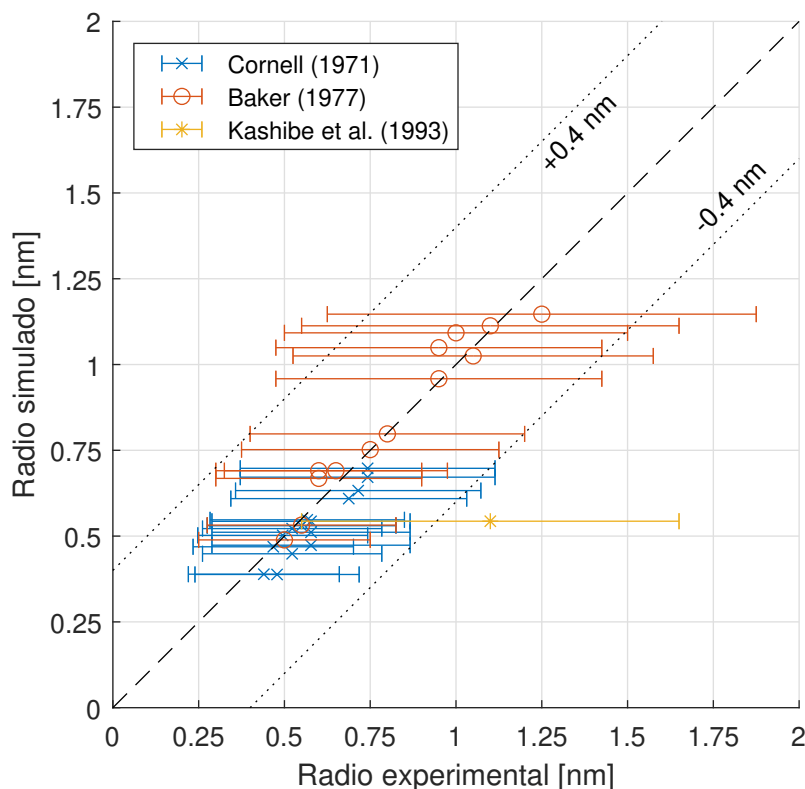


Figura 2.13: Datos experimentales vs. resultados simulados para el radio de las burbujas intragranulares. Las barras de error indican una incertidumbre del 50 % sobre el valor experimental [8], y las líneas punteadas representan el 50 % del máximo error obtenido.

Se puede observar, en general, un buen acuerdo entre ambos, con excepción de la concentración de burbujas obtenida experimentalmente por Cornell, que resulta ser menor que la concentración simulada. Baker atribuye esta discrepancia en la concentración observada por Cornell a la técnica de preparación de las láminas utilizadas para la observación en microscopios TEM, que fue mejorada en su trabajo posterior mediante el uso de láminas más delgadas y uniformes. De todas maneras, el término que domina en el cálculo del

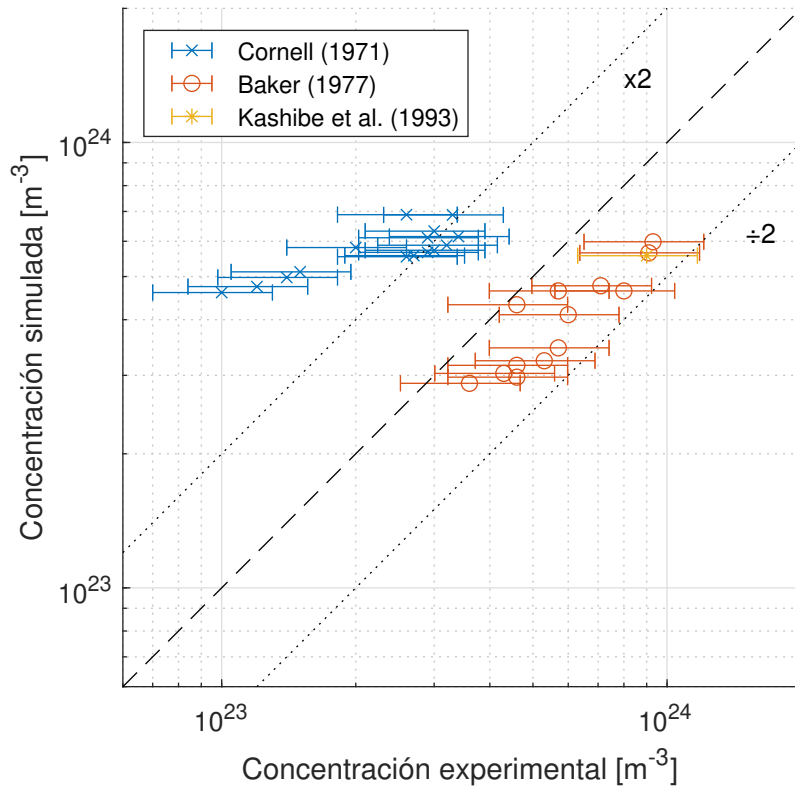


Figura 2.14: Datos experimentales vs. resultados simulados para la concentración de burbujas intragranulares. Las barras de error indican una incertidumbre del 30 % sobre el valor experimental [8], y las líneas punteadas representan desviaciones con un factor 2 en las medidas experimentales.

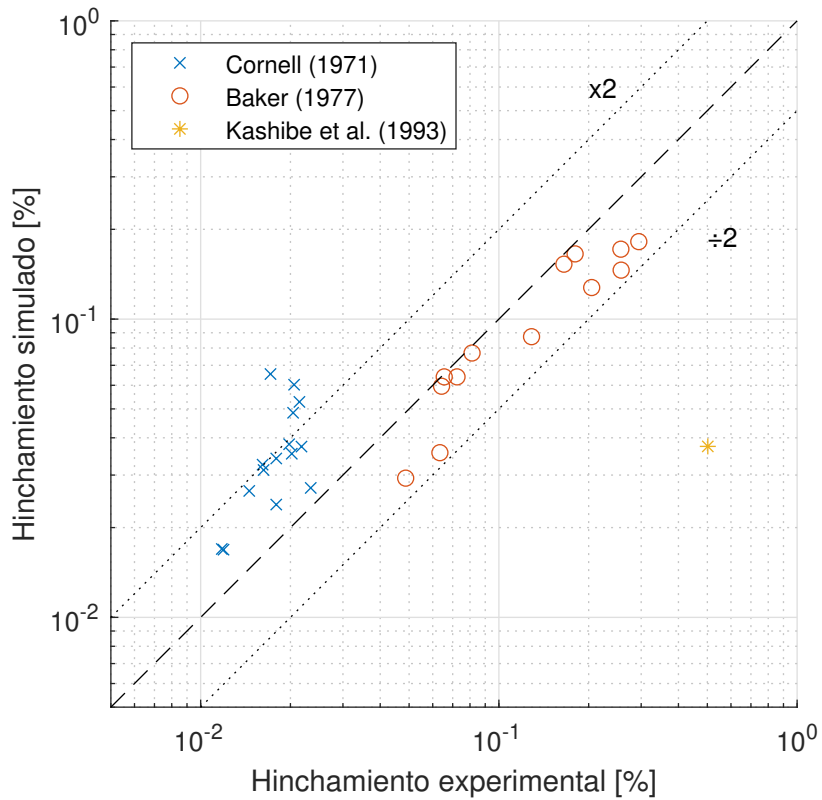


Figura 2.15: Datos experimentales vs. resultados simulados para el hinchamiento debido a las burbujas intragranulares. Las líneas punteadas representan desviaciones con un factor 2 en las medidas experimentales [8].

hinchamiento es el radio de las burbujas (por estar elevado a una potencia de tres, según la Ecuación 2.15), con lo cual se obtienen resultados satisfactorios para el hinchamiento. Por otra parte, el único experimento que presenta una diferencia significativa en cuanto al hinchamiento es el de Kashibe et al, donde se puede notar que el hinchamiento simulado es menor el medido experimentalmente. Esto se puede adjudicar al mayor quemado alcanzado en este experimento, con lo cual puede estar comenzando a tener influencia el efecto de *bubble coarsening*, es decir, el incremento de tamaño de la población de burbujas intragranulares comentado en la Sección 2, y que no es tenido en cuenta por el modelo actual.

Referencias

- [1] K. Lassmann y H. Benk. “Numerical algorithms for intragranular fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* 280 (2000), págs. 127-135.
- [2] R. M. Cornell. “An electron microscope examination of matrix fission-gas bubbles in irradiated uranium dioxide”. *Journal of Nuclear Materials* 38 (1971), págs. 319-328.
- [3] P. Losonen. “On the behaviour of intragranular fission gas in UO₂ fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 280 (1) (2000), págs. 56-72.
- [4] M. Mogensen, C. T. Walker, I. L. F. Ray y M. Coquerelle. “Local fission gas release and swelling in water reactor fuel during slow power transients”. *Journal of Nuclear Materials* 131 (1985), págs. 162-171.
- [5] P. Losonen. “On the effect of irradiation-induced resolution in modelling fission gas release in UO₂ LWR fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 496 (2017), págs. 140-156.
- [6] S. Kashibe, K. Une y K. Nogita. “Formation and growth of intragranular fission gas bubbles in UO₂ fuels with burnup of 6-83 GWd/t”. *Journal of Nuclear Materials* 206 (1993), págs. 22-34.
- [7] T. Barani, G. Pastore, A. Magni, D. Pizzocri, P. Van Uffelen y L. Luzzi. “Modeling intra-granular fission gas bubble evolution and coarsening in uranium dioxide during in-pile transients”. *Journal of Nuclear Materials* 538 (2020), pág. 152195.
- [8] D. Pizzocri, G. Pastore, T. Barani, A. Magni, L. Luzzi, P. Van Uffelen, S. A. Pitts, A. Alfonsi y J. D. Hales. “A model describing intra-granular fission gas behaviour in oxide fuel for advanced engineering tools”. *Journal of Nuclear Materials* 502 (2018), págs. 323-330.
- [9] M. V. Speight. “A calculation on the migration of fission gas in material exhibiting precipitation and re-resolution of gas atoms under irradiation”. *Nuclear Science and Engineering* 37 (1969), págs. 180-185.
- [10] R. J. M. Konings, ed. *Comprehensive Nuclear Materials, Volume 3: Advanced Fuels/Fuel Cladding/Nuclear Fuel Performance Modeling and Simulation, Chapter 3.19: Oxide Fuel Performance Modeling and Simulations*. Elsevier Science, 2012.
- [11] NEA. *Nuclear Fuel Behaviour Under Reactivity-initiated Accident (RIA) Conditions. State-of-the-art Report*. Nuclear Energy Agency No. 6847. 2010.
- [12] G. Pastore, D. Pizzocri, C. Rabiti, T. Barani, P. Van Uffelen y L. Luzzi. “An effective numerical algorithm for intra-granular fission gas release during non-equilibrium trapping and resolution”. *Journal of Nuclear Materials* 509 (2018), págs. 687-699.
- [13] C. H. Lee, Y. S. Yang, D. H. Kim, S. K. Kim y J. G. Bang. “A new mechanistic and engineering fission gas release model for a uranium dioxide fuel”. *Journal of Nuclear Science and Technology* 45 (2008), págs. 60-71.
- [14] D. Pizzocri, C. Rabiti, L. Luzzi, T. Barani, P. Van Uffelen y G. Pastore. “PolyPole1: An accurate numerical algorithm for intra-granular fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* 478 (2016), págs. 333-342.
- [15] J. R. Matthews y M. H. Wood. “An efficient method for calculating diffusive flow to a spherical boundary”. *Nuclear Engineering and Design* 56 (1980), págs. 439-443.
- [16] ANS. *Background and derivation of ANS-5.4 standard fission-product-release model*. Inf. téc. NUREG CR-2507. Washington, Estados Unidos: American Nuclear Society, 1982.

- [17] ANS. *Background and derivation of ANS-5.4 standard fission-product-release model*. Inf. téc. NUREG CR-7003, PNNL-18490. Washington, Estados Unidos: American Nuclear Society, 2010.
- [18] P. T. Elton y K. Lassmann. “Calculational methods for diffusional gas release”. *Nuclear Engineering and Design* 101 (1987), págs. 259-265.
- [19] P. Lösonen. “Methods for calculating diffusional gas release from spherical grains”. *Nuclear Engineering and Design* 196 (2000), págs. 161-173.
- [20] L. Váth. “Approximate treatment of the grain-boundary loss term in fission gas release models”. *Journal of Nuclear Materials* 99 (1981), págs. 324-326.
- [21] L. C. Bernard y E. Bonnaud. “Finite volume method for fission gas release modeling”. *Journal of Nuclear Materials* 244 (1997), págs. 75-84.
- [22] K. Forsberg y A. R. Massih. “Fission gas release under time-varying conditions”. *Journal of Nuclear Materials* 127 (1985), págs. 141-145.
- [23] K. Forsberg y A. R. Massih. “Diffusion theory of fission gas migration in irradiated nuclear fuel UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 135 (1985), págs. 140-148.
- [24] G. Zullo, D. Pizzocri y L. Luzzi. “On the use of spectral algorithms for the prediction of short-lived volatile fission product release: Methodology for bounding numerical error”. *Nuclear Engineering and Technology* 54 (2022), págs. 1195-1205.
- [25] G. Pastore, D. Pizzocri, C. Rabiti, T. Barani, P. Van Uffelen y L. Luzzi. “An effective numerical algorithm for intra-granular fission gas release during non-equilibrium trapping and resolution”. *Journal of Nuclear Materials* 509 (2016), págs. 687-699.
- [26] L. F. Shampine y M. W. Reichelt. “The MATLAB ODE Suite”. *SIAM Journal on Scientific Computing* 18 (1997), págs. 1-22.
- [27] G. Pastore, L. P. Swiler, J. D. Hales, S. R. Novascone, D. M. Perez, B. W. Spencer, L. Luzzi, P. Van Uffelen y R. L. Williamson. “Uncertainty and sensitivity analysis of fission gas behavior in engineering-scale fuel modeling”. *Journal of Nuclear Materials* 456 (2015), págs. 398-408.
- [28] D. R. Olander y D. Wongsawaeng. “Re-resolution of fission gas – A review: Part I, Intragranular bubbles”. *Journal of Nuclear Materials* 354 (2006), págs. 94-109.
- [29] J. A. Turnbull. “The distribution of intragranular fission gas bubbles in UO_2 during irradiation”. *Journal of Nuclear Materials* 38 (1971), págs. 203-212.
- [30] C. Baker. “The fission gas bubble distribution in uranium dioxide from high temperature irradiated SGHWR fuel pins”. *Journal of Nuclear Materials* 66 (1977), págs. 283-291.
- [31] H. Matzke. “Diffusion in doped UO_2 ”. *Nuclear Applications* 2 (1966), págs. 131-137.
- [32] H. Matzke. “Xenon migration and trapping in doped ThO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 21 (1967), págs. 190-198.
- [33] P. Losonen. “Modelling intragranular fission gas release in irradiation of sintered LWR UO_2 fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 304 (2002), págs. 29-49.
- [34] D. Davies y G. Long. *The emission of Xenon-133 from lightly irradiated uranium dioxide spheroids and powders*. Inf. téc. AERE-R4347. Berkshire, United Kingdom: United Kingdom Atomic Energy Authority, 1963.
- [35] R. M. Cornell, M. V. Speight y B. C. Masters. “The role of bubbles in fission gas release from uranium dioxide”. *Journal of Nuclear Materials* 30 (1969), págs. 170-178.

- [36] J. A. Turnbull, C. A. Friskney, J. R. Findlay, F. A. Johnson y A. J. Walter. “The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide”. *Journal of Nuclear Materials* 107 (1982), págs. 168-184.
- [37] A. Denis y R. Piotrkowski. “Simulation of isothermal fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* 229 (1996), págs. 149-154.
- [38] C. Ronchi. “Thermophysical properties affecting safety and performance of nuclear fuel”. *High Temperature* 45 (4) (2007), págs. 552-571.
- [39] J. A. Turnbull, R. J. White y C. Wise. *The diffusion coefficient for fission gas atoms in uranium dioxide*. Inf. téc. IAEA-TC-659/3.5. Vienna, Austria: International Atomic Energy Agency - International Working Group on Water Reactor Fuel Performance and Technology: Technical committee on water reactor fuel element computer modelling in steady state, transient y accident conditions, 1988.
- [40] J. Rest, M. W. D. Cooper, J. Spino, J. A. Turnbull, P. Van Uffelen y C. T. Walker. “Fission gas release from UO₂ nuclear fuel: A review”. *Journal of Nuclear Materials* 513 (2019), págs. 310-345.
- [41] R. Perriot, C. Matthews, M. W. D. Cooper, B. P. Uberuaga, C. R. Stanek y D. A. Andersson. “Atomistic modeling of out-of-pile xenon diffusion by vacancy clusters in UO₂”. *Journal of Nuclear Materials* 520 (2019), págs. 96-109.
- [42] C. Matthews, R. Perriot, M. W. D. Cooper, C. R. Stanek y D. A. Andersson. “Cluster dynamics simulation of xenon diffusion during irradiation in UO₂”. *Journal of Nuclear Materials* 540 (2020), pág. 152326.
- [43] R. J. White y M. O. Tucker. “A new fission-gas release model”. *Journal of Nuclear Materials* 118 (1983), págs. 1-38.
- [44] T. Nakajima y S. H. “A comparison between fission gas release data and FEMAXI-IV code calculations”. *Nuclear Engineering and Design* 101 (1987), págs. 267-279.
- [45] T. Kogai. “Modelling of fission gas release and gaseous swelling of light water reactor fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 244 (1997), págs. 131-140.
- [46] D. Pizzocri, T. Barani y L. Luzzi. “SCIANTIX: A new open source multi-scale code for fission gas behaviour modelling designed for nuclear fuel performance codes”. *Journal of Nuclear Materials* 532 (2020), pág. 152042.
- [47] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. Technical Information Center, Office of Public Affairs, Energy Research and Development Administration, 1976. Cap. 13.
- [48] H. Bailly, D. Ménessier y C. Prunier. *The Nuclear Fuel of Pressurized Water Reactors and Fast Reactors: Design and Behaviour*. Lavoisier Publishing e Intercept Ltd, 1999.
- [49] M. Tonks, D. Andersson, R. Devanathan, A. El-Azab, M. Freyss, F. Iglesias, K. Kulacsy, G. Pastore, S. R. Phillpot y M. Welland. “Unit mechanisms of fission gas release: Current understanding and future needs”. *Journal of Nuclear Materials* 504 (2018), págs. 300-317.
- [50] F. S. Ham. “Theory of diffusion-limited precipitation”. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 6 (1958), págs. 335-351.
- [51] K. Govers, C. L. Bishop, D. C. Parfitt, S. E. Lemehov, M. Verwerft y R. W. Grimes. “Molecular dynamics study of Xe bubble re-resolution in UO₂”. *Journal of Nuclear Materials* No. 1-3 (2012), págs. 282-290.

- [52] K. Nogita y K. Une. “High resolution TEM observation and density estimation of Xe bubbles in high burnup UO_2 fuels”. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 141 (1998), págs. 481-486.

3. Gas intergranular

A diferencia de las burbujas intragranulares, las burbujas intergranulares pueden crecer hasta tamaños del orden de los micrones, con lo cual pueden representar la mayor contribución al cambio de volumen del combustible [2-4]. Esto se debe a que, como se discutió en la Sección 2, las burbujas intragranulares no tienen la capacidad de crecer hasta tamaños apreciables debido al fenómeno de re-disolución, que causa la pérdida de átomos de gas de las burbujas debido a la interacción con los fragmentos de fisión. Sin embargo, la presencia de sumideros (tales como los bordes de grano) hace que la tasa de re-disolución sea menos efectiva en el caso de las burbujas intergranulares [5, 6]. La fundamentación de esta suposición se basa en que el borde de grano, por su condición de sumidero, proporciona una distancia relativamente corta para la re-captura de aquellos átomos de gas que fueron expulsados de la burbuja, neutralizando entonces el efecto de “encogimiento” que genera el proceso de re-disolución. Otra de las razones para el mayor tamaño de las burbujas intergranulares está dado por su mecanismo de crecimiento: los átomos de gas que arriban al borde de grano pasan a formar parte de las burbujas intergranulares rápidamente debido a que el coeficiente de difusión en borde de grano es órdenes de magnitud mayor que el coeficiente de difusión en volumen. Por otra parte, las burbujas también crecen debido a la absorción de vacancias generadas en el borde de grano, proceso que tiende a desarrollarse para restablecer el equilibrio mecánico ante la sobre-presurización de las burbujas. Este mecanismo de crecimiento es mucho más eficaz

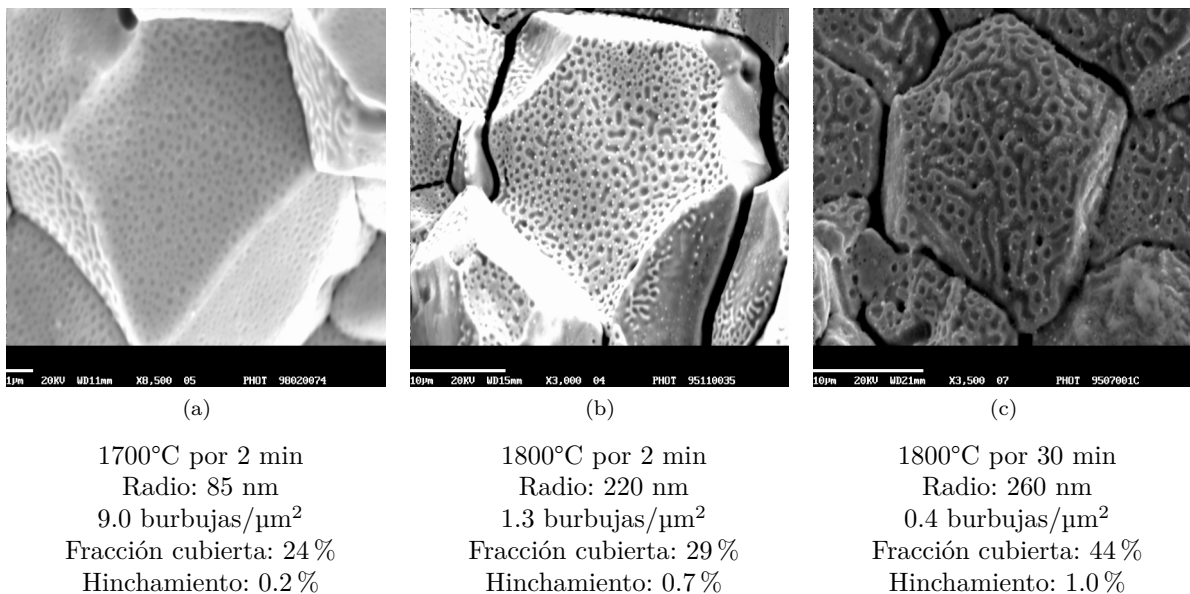


Figura 3.1: Evolución de la población de burbujas intergranulares, donde se ejemplifica (a) el comienzo del proceso de hinchariento, (b) un desarrollo intermedio del hinchariento, y (c) un estado avanzado del hinchariento. Adaptado de White [1].

que el mecanismo de atrapamiento que se da en el caso de las burbujas intragranulares (ver Sección 2.1.4), lo cual también explica el mayor tamaño observado en las burbujas intergranulares.

Otra de las diferencias fundamentales con respecto al módulo de gas intragranular, y que está relacionado al mayor tamaño de las burbujas, es la influencia del fenómeno de coalescencia. Se define a la coalescencia como un proceso mediante el cual dos burbujas de gas se “fusionan” para formar una sola burbuja, lo cual termina dando como resultado neto una menor concentración de burbujas intergranulares, pero de mayor tamaño. El crecimiento y la interconexión de burbujas conlleva eventualmente a la formación de “redes de túneles” o caminos de percolación a partir de los cuales el gas puede ser liberado hacia el volumen libre de la barra combustible. En la Figura 3.1 se muestra un ejemplo de evolución típico de las burbujas intergranulares. Como se puede observar, en los primeros momentos se tiene una mayor concentración de burbujas y hay apenas una mínima evidencia de interacción mecánica entre ellas. Luego tiene lugar el proceso de coalescencia: el aumento de tamaño de las burbujas hace que interactúen mecánicamente entre ellas, disminuyendo su concentración. Finalmente, en un estadio avanzado del desarrollo de la porosidad se puede observar la interconexión entre las burbujas, formando caminos que eventualmente producen la liberación de gases hacia el exterior del combustible.

3.1. Modelo del comportamiento del gas intergranular

Para modelar el comportamiento del gas intergranular, se toma como base el trabajo de Pastore et al. [7], publicado en el año 2013. Este modelo considera que las burbujas nuclean por única vez en un primer instante, y la nucleación no continúa con la irradiación. Luego, las burbujas van aumentando su tamaño debido a la absorción de átomos y vacancias controlado por la difusión. El crecimiento de las burbujas hace que, eventualmente, comiencen a interferir mecánicamente unas con otras, dando lugar a un fenómeno de coalescencia que tiende a disminuir la concentración de burbujas, a la vez que aumentan su tamaño. El crecimiento y la interconexión de burbujas hace que aumente la fracción de superficie de borde de grano que se encuentra cubierta por burbujas (parámetro denominado como “cobertura fraccional”). Una vez que se alcanza una cobertura del 50 % de la superficie, se asume que se alcanza el nivel de saturación, lo cual conlleva a la formación de un camino de percolación en los bordes de grano que permite la liberación de gases hacia el volumen libre de la barra combustible. Es importante notar el acople que hay entre la liberación de gases y el hinchamiento; la tasa de hinchamiento tenderá a disminuir una vez que se forma el camino de percolación, ya que los átomos que difunden desde el interior del grano no se encuentran en su totalidad almacenados en las burbujas intergranulares, porque una fracción es liberada hacia el exterior.

Por otra parte, el modelo considera que la población de burbujas intergranulares posee una morfología lenticular, que se describe a partir de la unión de dos casquetes esféricos situados a ambos lados del plano que representa el borde de grano, conformando una proyección circular sobre el mismo, tal como se muestra en la Figura 3.2.

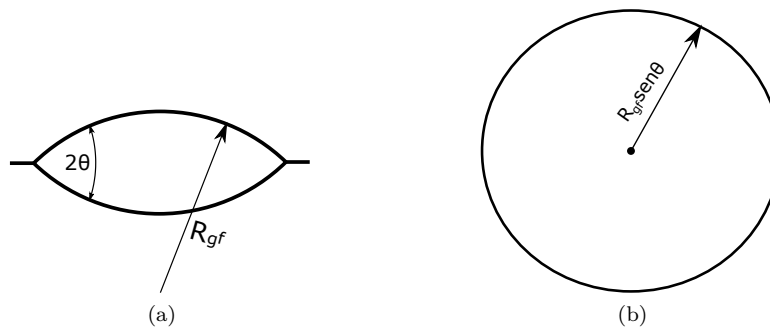


Figura 3.2: Esquema de la morfología de las burbujas intergranulares.
(a) Sección transversal (b) Proyección circular sobre el borde de grano.

Las burbujas intergranulares adoptan esta forma no-esférica debido a la diferencia que existe entre la energía del borde de grano y la energía de las superficies libres. Cuando dos superficies libres se encuentran en un borde de grano, el ángulo entre ellas es de 2θ . Ese ángulo está determinado por las magnitudes relativas de las energías del borde de grano

γ_{gb} y las superficies libres γ_{fs} , respectivamente:

$$\theta = \arccos \left(\frac{\gamma_{gb}}{2\gamma_{fs}} \right) \quad (3.1)$$

Para el caso del UO_2 , el valor aceptado es de $\theta = 50^\circ$ [8].

Matemáticamente, se puede representar al modelo que describe la evolución de la concentración de gas intergranular $\psi_{intergranular}$ (m^{-3}) mediante la siguiente ecuación de balance:

$$\psi_{intergranular} = \psi_{generado} - \psi_{intragranular} - \psi_{liberado} \quad (3.2)$$

donde la concentración de átomos de gas producido ($\psi_{generado}$) y átomos de gas intragranular ($\psi_{intragranular}$) se calculan mediante el modelo presentado en la Sección 2, y el término de liberación ($\psi_{liberado}$) se modela teniendo en cuenta todos los fenómenos explicados previamente, es decir, el crecimiento de las burbujas, su posterior interconexión y la formación del camino de percolación que permite la liberación de gases hacia el exterior del combustible. En las siguientes secciones se detalla el modelado de cada uno de estos mecanismos.

Finalmente, se puede calcular el hinchamiento debido a las burbujas intergranulares como:

$$\left(\frac{\Delta V}{V} \right)_{intergranular} = \frac{1}{2} \frac{3}{a} \left(\frac{4\pi\varphi(\theta)R_{gf}^3}{3} \right) N_{gf} \quad (3.3)$$

donde el factor $3/a$ hace referencia a la relación superficie-volumen de un grano esférico de radio a (necesaria para dar cuenta que la concentración de átomos que arriba al borde de grano se distribuye ahora sobre una superficie, en lugar de un volumen), R_{gf} es el radio de curvatura de la burbuja (m), N_{gf} es la concentración de burbujas intergranulares por unidad de superficie (m^{-2}), el factor $1/2$ tiene en cuenta que una burbuja es compartida por dos granos, y el factor de forma $\varphi(\theta)$ que se utiliza para relacionar el volumen de una burbuja lenticular con el de una esfera está dado por:

$$\varphi(\theta) = 1 - \frac{3}{2} \cos \theta + \frac{1}{2} \cos^3 \theta \quad (3.4)$$

En cuanto a las limitaciones del modelo, se puede destacar, en primer lugar, que no tiene en cuenta las particularidades referidas a las burbujas que se encuentran en el borde donde se encuentra la unión de tres granos, o en las esquinas donde se encuentra la unión de cuatro granos [9], dándole el mismo tratamiento que las burbujas que se encuentran en la cara de los granos (donde se encuentra la unión de dos granos). Esta suposición está en línea con otros modelos de hinchamiento debido al gas intergranular presentes en la literatura [4, 10]. Por otro lado, el modelo considera que todas las burbujas intergranulares tienen igual tamaño y forma en un dado instante de tiempo, obteniéndose entonces un promedio representativo de todas las burbujas.

3.1.1. Nucleación de las burbujas

El mecanismo de nucleación de las burbujas intergranulares fue explicado por White [1] en base a observaciones experimentales. Como fue presentado en la Sección 2, las burbujas intragranulares observadas en combustibles irradiados poseen, en promedio, diámetros de alrededor de 1 nm y concentraciones entre 10^{23} y 10^{24} burbujas/m³. Si se asume que estas burbujas se encuentran uniformemente distribuidas en el grano, una fracción de las mismas estarán nucleadas dentro de un radio de distancia con respecto al borde de grano. Luego, el crecimiento de esas burbujas resultará en la intersección con el borde de grano, haciendo que las burbujas crezcan como burbujas intergranulares. White llega a esta conclusión notando que la concentración de burbujas intragranulares (que se corresponde con 50 a 500 burbujas por μm^2 de borde de grano) es consistente con la concentración de burbujas intergranulares observada al comienzo del período de irradiación, donde todavía no fue afectada por los fenómenos de crecimiento y coalescencia. En este trabajo se toma como parámetro de nucleación inicial de burbujas intergranulares $N_{gf,0} = 1 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$. Este valor se encuentra dentro del rango establecido por White, quien sugiere utilizar entre $1 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ y $5 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$, indicando además que el valor no es tan crítico ya que una vez que comienza el proceso de hinchamiento, la concentración de burbujas comienza a decaer rápidamente.

Es importante notar que este mecanismo tiene una diferencia fundamental con respecto al fenómeno de nucleación de burbujas intragranulares. En el caso de las burbujas intragranulares, la nucleación se da de manera continua, ya que se relaciona directamente con la interacción de los fragmentos energéticos de fisión con la red. Sin embargo, de acuerdo a este modelo la nucleación de las burbujas intergranulares es un fenómeno que ocurre una única vez (*one-off nucleation*), es decir, se tiene un número inicial de burbujas en bordes de grano, y se considera que la nucleación no continúa durante la irradiación. Esto se debe a que, una vez que comienzan los fenómenos de crecimiento y coalescencia, la población de burbujas inicial tenderá a absorber cualquier nueva burbuja que nuclea, dando como resultado neto el efecto de una única nucleación. Es importante destacar que esta suposición de nucleación por única vez es utilizada también por otros modelos presentes en la literatura [10, 11].

3.1.2. Crecimiento de las burbujas

De acuerdo a este modelo, el crecimiento de las burbujas intergranulares se da a partir de la absorción de átomos de gas y de vacancias. Con respecto a la absorción de átomos de gas, el modelo supone que todos los átomos de gas que llegan al borde de grano por efecto de la difusión pasan a formar parte de las burbujas intergranulares de manera instantánea. Este atrapamiento inmediato por parte de las burbujas implica que no existen átomos de gas “libres” en el borde de grano. La justificación de este supuesto se basa en la difusividad en el borde de grano, que resulta ser órdenes de magnitud mayor a la difusividad en el

interior del mismo, presentando entonces un camino rápido para la migración de los átomos de gas.

Ahora bien, en general las burbujas intergranulares se encuentran sobre-presurizadas [12, 13], de forma tal que tienden a restaurar el estado de equilibrio mediante la emisión o absorción de vacancias. Se utiliza el modelo de Speight y Beere [14] para describir el crecimiento (o encogimiento) de las burbujas intergranulares a partir de la absorción (o emisión) de vacancias generadas en el borde de grano. Este modelo considera al borde de grano como una fuente perfecta e inagotable de vacancias. Luego, la tasa de absorción/emisión de vacancias en una burbuja de morfología lenticular está dada por:

$$\frac{dn_v}{dt} = \frac{2\pi D_v \delta_g}{k_B T S} (p - p_{eq}) \quad (3.5)$$

siendo n_v el número de vacancias dentro de la burbuja, D_v el coeficiente de difusión en el borde de grano ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$), δ_g el espesor del borde de grano (m), k_B la constante de Boltzmann (J K^{-1}), T la temperatura absoluta (K), p la presión del gas en la burbuja (Pa) y p_{eq} la presión de la burbuja en equilibrio con el medio que la rodea (Pa). El parámetro S representa la fuerza del sumidero, y está dado por:

$$S = -\frac{(3 - F)(1 - F) + 2 \ln(F)}{4} \quad (3.6)$$

donde $F = N_{gf} A_{gf}$ es un parámetro adimensional que representa la fracción del borde de grano que se encuentra cubierta por las burbujas intergranulares, con A_{gf} el área de la burbuja proyectada sobre el borde de grano (m^2).

La presión de equilibrio p_{eq} se puede obtener a partir del balance de fuerzas planteado sobre una burbuja de gas en un medio sólido que se encuentra sujeto a una presión hidrostática uniforme (ver Figura 3.4). Cuando este sistema se encuentra en equilibrio, la presión del gas (que actúa tendiendo a expandir la burbuja) se balancea con la presión hidrostática y la fuerza de tensión superficial (que tienden a contraer la burbuja). Este balance de fuerzas da como resultado la ecuación de Young-Laplace [15]:

$$p_{eq} = \frac{2\gamma}{R_{gf}} - \sigma_h \quad (3.7)$$

donde $\gamma = 1 \text{ J m}^{-2}$ es la tensión superficial de la interface UO_2/gas [10], R_{gf} es el radio de curvatura de las burbujas intergranula-

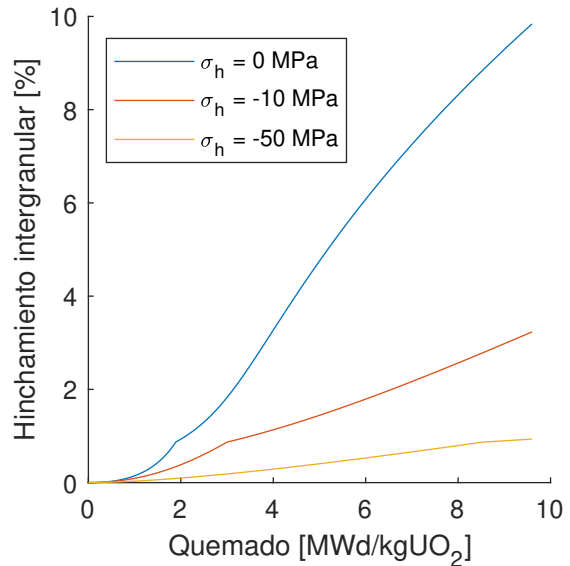


Figura 3.3: Efecto de la presión hidrostática sobre el hinchamiento intergranular ($T = 1500^\circ\text{C}$).

res (m) y σ_h es la presión hidrostática (Pa), que se considera con signo negativo en el caso de ser de compresión. Es importante destacar que la presión hidrostática representa una variable significativa para restringir el hinchamiento volumétrico debido a las burbujas intergranulares. Este efecto es de particular importancia en condiciones de contacto pastilla-vaina (*pellet cladding mechanical interaction*, o PCMI), donde se pueden desarrollar altas tensiones compresivas sobre el combustible. A modo de ejemplo, en la Figura 3.3 se muestra el hinchamiento intergranular para condiciones isotérmicas de 1500°C, utilizando los mismos parámetros para distintas simulaciones que consideran presiones hidrostáticas de 0, -10 y -50 MPa. Como se puede observar, a mayor presión, menor es el hinchamiento resultante. Evidencia experimental de este fenómeno se puede encontrar en las referencias [3, 16].

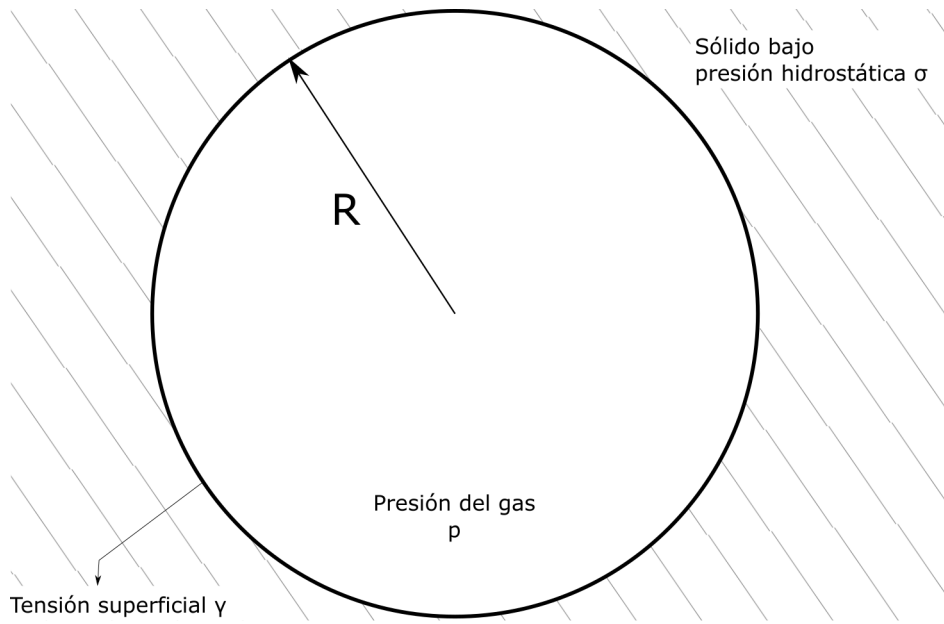


Figura 3.4: Burbuja de gas en equilibrio mecánico con un sólido bajo presión hidrostática.

Con respecto a la presión del gas dentro de la burbuja p , se suele utilizar la ecuación de estado de Van der Waals para describir el estado termodinámico del gas dentro de la burbuja [15]. La ecuación de Van der Waals se puede escribir como:

$$p(V_{gf} - n_g\omega) = n_g k_B T \quad (3.8)$$

siendo $\omega = 0.0850 \text{ nm}^3$ el volumen de Van der Waals de un átomo de gas [15], n_g el número de átomos de gas dentro de la burbuja, y V_{gf} el volumen de la burbuja. En la ecuación se omite el término correspondiente a la interacción entre los átomos de gas, ya que en el caso del Xenón se puede considerar despreciable [4, 15]. Por otra parte, el volumen V_{gf} de una burbuja que contiene n_g átomos de gas y n_v vacancias se puede calcular como:

$$V_{gf} = n_g\omega + n_v\Omega_{gf} \quad (3.9)$$

donde $\Omega_{gf} = 0.0409 \text{ nm}^3$ es el volumen atómico que ocupa una vacancia dentro de la burbuja [15]. Luego, la Ecuación (3.8) se puede escribir como:

$$p = \frac{k_B T n_g}{\Omega_{gf} n_v} \quad (3.10)$$

Finalmente, a partir del volumen de la burbuja es posible calcular el radio, teniendo en cuenta que la burbuja posee una morfología lenticular con proyección circular:

$$R_{gf} = \left(\frac{3V_{gf}}{4\pi\varphi(\theta)} \right)^{1/3} \quad (3.11)$$

3.1.3. Coalescencia

El crecimiento de las burbujas hace que, eventualmente, las burbujas se intersecten y se unan, dando como resultado una menor concentración de burbujas, pero de mayor tamaño. Este fenómeno de interferencia mecánica, denominado coalescencia, fue descrito por White [1], quien adapta los resultados obtenidos por Chandrasekhar [17] acerca de la distribución de vecinos más cercanos en un arreglo aleatorio y tridimensional de partículas.

El modelo considera que, una vez que comienza la coalescencia, cada burbuja de radio proyectado R_p y área proyectada $A_{gf} = \pi R_p^2$ estará rodeada por una circunferencia de radio $2R_p$, conformando una zona de exclusión en la cual no puede existir ninguna otra burbuja; cualquier burbuja cuyo centro se encuentre en esta zona de exclusión tendría su perímetro dentro del perímetro de la otra burbuja, por lo tanto ocurrirá el fenómeno de coalescencia (ver Figura 3.5). Ahora bien, teniendo en cuenta que cada burbuja está compuesta de átomos de gas y de vacancias, durante el proceso de coalescencia se considera que se debe conservar el volumen de las burbujas. Esto genera que, en el punto de contacto entre las burbujas, cualquier crecimiento subsiguiente del área proyectada por una cantidad $dA_{gf} = 2\pi R_p dR_p$ hará que el área de la zona de exclusión incremente por una cantidad $4dA_{gf}$, haciendo posible que $4N_{gf}dA_{gf}$ burbujas sean recolectadas y pasen a formar parte de una burbuja de mayor tamaño.

En base a estas consideraciones, White establece que la disminución en la concentración de burbujas total y el correspondiente incremento del área proyectada estará dado por:

$$\frac{dN_{gf}}{dt} = -2N_{gf}^2 \frac{dA_{gf}}{dt} \quad (3.12)$$

Físicamente, en el punto en que se comienza a producir la coalescencia, la forma proyectada de la nueva burbuja será la de dos círculos en contacto. En ese punto de contacto se formará un menisco angosto con un alto grado de curvatura, por donde comenzará a difundir material hasta que no haya más gradientes de curvatura sobre la superficie de la burbuja. Dado suficiente tiempo, la forma final de la burbuja será la de una burbuja lenticular más grande con una proyección circular sobre el borde de grano.

Por último, la concentración de burbujas intergranulares no disminuye indefinidamente,

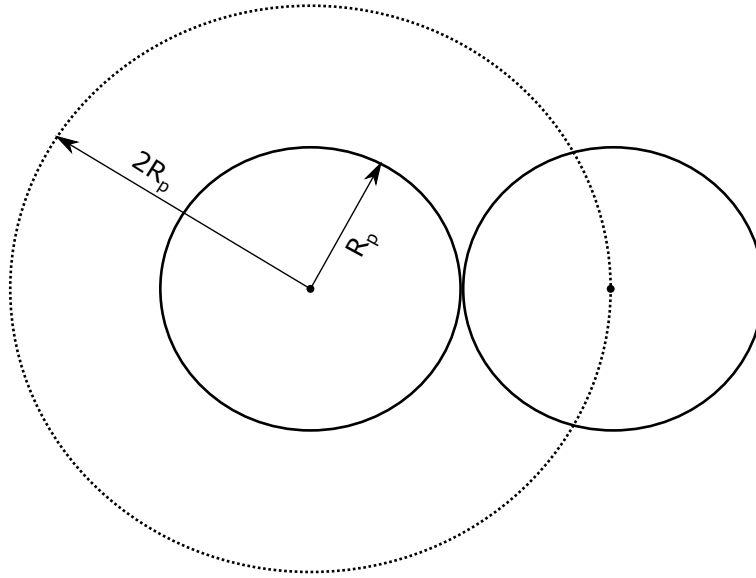


Figura 3.5: Representación gráfica del fenómeno de coalescencia de dos burbujas de radio proyectado R_p .

sino que existe un límite inferior a partir del cual la concentración se mantiene constante. En base al código de combustible BISON [18], se toma un límite inferior de $N_{gf,inf} = 10^{10}$ burbujas/m² para combustibles de UO₂ en reactores del tipo LWR (*Light Water Reactors*, o reactores de agua liviana).

3.1.4. Liberación de gases de fisión

La liberación de gases de fisión hacia el volumen libre de la barra combustible se modela a partir del principio de saturación del borde de grano. Luego de que se produce la interconexión de burbujas intergranulares, llega un punto donde el parámetro de cobertura fraccional F alcanza el valor de saturación F_{sat} :

$$F = N_{gf}A_{gf} = F_{c,sat} \quad (3.13)$$

Físicamente, luego de alcanzada la condición de saturación se produce la generación de los canales debido a la interconexión de las burbujas, con lo cual comienza la liberación de gases. La liberación de gas hace que los canales se despresuricen y colapsen, generando una disminución de la concentración de burbujas, lo cual a su vez disminuye el parámetro de cobertura fraccional ($F_c < F_{c,sat}$). Sin embargo, las burbujas siguen creciendo por los procesos de difusión, haciendo que se vuelva a alcanzar nuevamente la condición de saturación, repitiendo el proceso previamente mencionado y manteniendo el parámetro de cobertura fraccional promedio aproximadamente constante. En base a datos experimentales, se obtiene que la condición de saturación se produce cuando $F_{c,sat} = 0.5$ [11].

En el modelo, una vez que se llega a la saturación, tanto la concentración de burbujas

como el área proyectada deben balancearse de forma tal que:

$$\frac{dF}{dt} = 0 \quad (3.14)$$

Luego, la tasa de disminución en la concentración de burbujas intergranulares debido a la liberación de gases está dada por:

$$\frac{d(N_{gf}A_{gf})}{dt} = 0 \quad (3.15)$$

$$\frac{dN_{gf}}{dt}A_{gf} + \frac{dA_{gf}}{dt}N_{gf} = 0 \quad (3.16)$$

$$\frac{dN_{gf}}{dt} = -\frac{N_{gf}}{A_{gf}} \frac{dA_{gf}}{dt} \quad (3.17)$$

El hecho de que, una vez alcanzada, se deba mantener en todo momento la condición de saturación implica que una fracción del gas intergranular es liberada para compensar el crecimiento de las burbujas. Como se puede observar en la Ecuación (3.17), esta fracción de gas intergranular se modela como una disminución en la concentración de burbujas intergranulares. La ecuación general que gobierna la concentración de burbujas será entonces:

$$\frac{dN_{gf}}{dt} = \begin{cases} -2N_{gf}^2 \frac{dA_{gf}}{dt}, & \text{si } F < F_{sat} \\ -\frac{N_{gf}}{A_{gf}} \frac{dA_{gf}}{dt}, & \text{si } F = F_{sat} \end{cases} \quad (3.18)$$

Por último, como cada burbuja contiene n_g átomos de gas de fisión, se puede calcular la liberación de gases de fisión como:

$$\frac{dn_{fgr}}{dt} = \begin{cases} 0, & \text{si } F < F_{sat} \\ n_g \frac{N_{gf}}{A_{gf}} \frac{dA_{gf}}{dt}, & \text{si } F = F_{sat} \end{cases} \quad (3.19)$$

donde n_{fgr} es el número de átomos de gas de fisión por unidad de área de borde grano que se liberan al volumen libre de la barra combustible.

Es importante destacar que este enfoque permite tener en cuenta el acople existente entre el hinchamiento y el fenómeno de liberación de gas: una vez que comienza la liberación, la tasa de hinchamiento intergranular se verá reducida debido a que parte de ese gas está siendo liberado del borde de grano. Esto se puede observar en la Figura 3.6, donde se ejemplifica este comportamiento utilizando una historia de potencia constante de 10000 horas a una temperatura de 1200 °C y una potencia lineal de 30 KW/m. Si se analiza la evolución de la concentración y el área proyectada de las burbujas intergranulares hasta alcanzar el valor de saturación, se puede notar que la concentración inicial de 1×10^{13} burbujas/m² va decayendo debido al fenómeno de coalescencia, mientras que el área proyectada va aumentando debido a la incorporación de átomos de gas y vacancias. Como

consecuencia, el parámetro de cobertura fraccional $F = N_{gf} A_{gf}$ aumenta con el quemado, hasta alcanzar el valor de saturación $F_{sat} = 0.5$. En este punto, el comportamiento de la concentración y el área proyectada cambia de forma tal de mantener en todo momento esta condición de saturación, que indica el comienzo de la liberación de los gases de fisión, tal como se muestra en el gráfico de la evolución de la concentración de gases. Por último, también se puede notar la influencia de este fenómeno en el hinchamiento intergranular; una vez que comienza la liberación de gases, la tasa de hinchamiento se reduce.

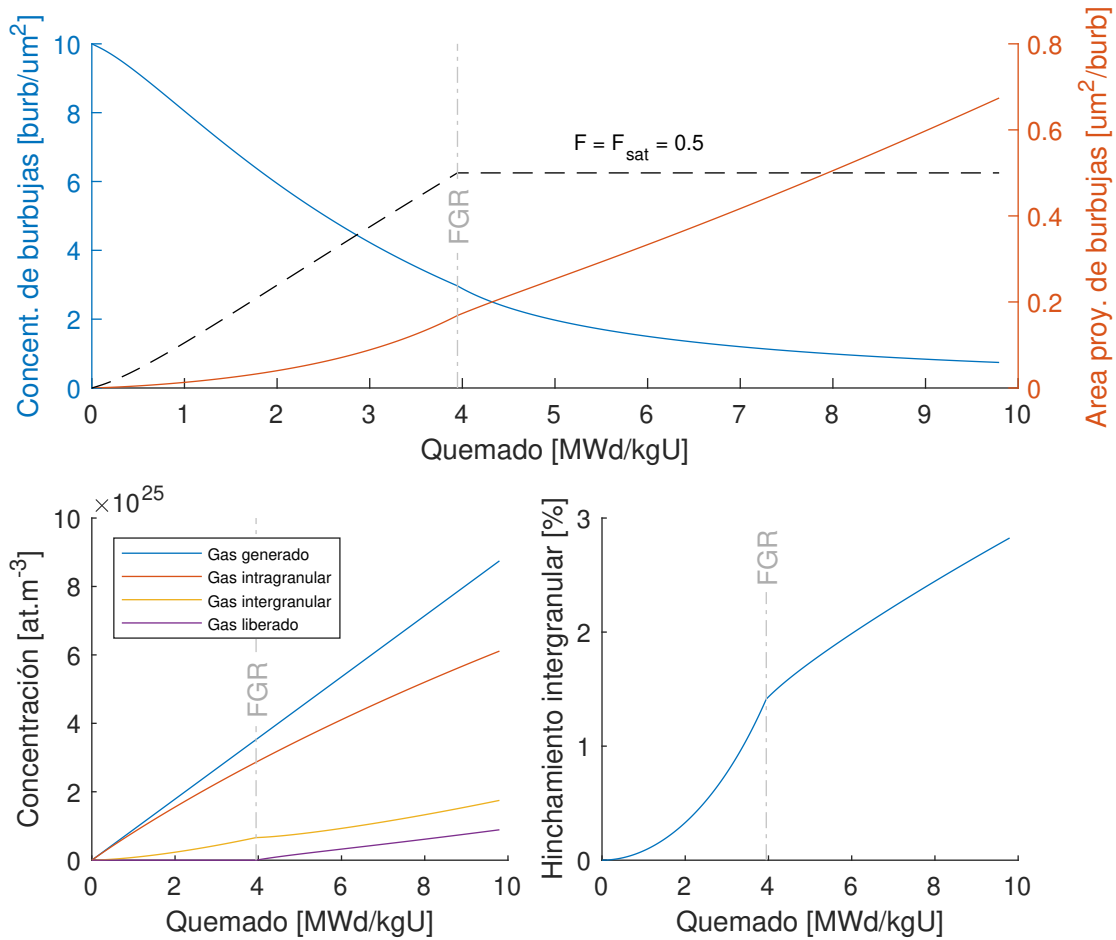


Figura 3.6: Evolución de la concentración y el área proyectada de las burbujas intergranulares (arriba), evolución de la concentración de gas (abajo, izq.) y evolución del hinchamiento intergranular (abajo, der.). La línea vertical FGR indica el inicio de la liberación de gases de fisión.

Por otra parte, el modelo también permite reproducir el comportamiento de “incubación” observado en experimentos de liberación de gases de fisión, donde la liberación de gases comienza a partir de un determinado grado de quemado. Este valor, que se puede interpretar como el tiempo necesario para alcanzar la interconexión de las burbujas intergranulares, es además dependiente de la temperatura, tal como se puede observar en la Figura 3.7, donde se muestra la fracción de liberación de gases (calculada como el cociente entre el gas liberado total y el gas producido total) en función del quemado para seis valores de temperatura constante entre 1000 y 2000 °C.

Se puede notar que, en primer lugar, a mayores temperaturas se tiene mayor liberación

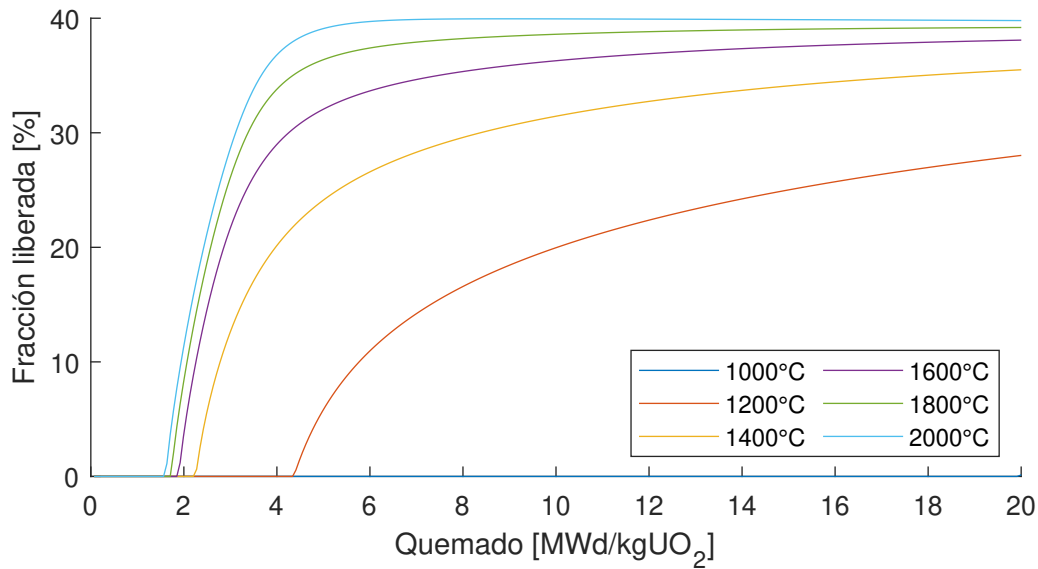


Figura 3.7: Comportamiento del período de “incubación” de la liberación de gases de fisión para distintas temperaturas.

de gases de fisión. Esto se debe a la mayor movilidad de los átomos de gas a altas temperaturas. Por otra parte, se puede notar que, a medida que aumenta la temperatura, se reduce el quemado necesario para comenzar la liberación de gases. Este comportamiento se describe mediante el llamado “límite de Vitanza”. Esta curva indica, en función del quemado, el límite de temperatura a partir del cual la liberación de gases de fisión es nula o despreciable (típicamente se considera un valor menor al 1 o 2% de gas liberado). El límite de Vitanza obtenido empíricamente a partir de mediciones experimentales está dado por [19, 20]:

$$T_c = \frac{9800}{\ln\left(\frac{BU}{0.005}\right)} \quad (3.20)$$

donde T_c es la temperatura en la línea central del combustible (°C), y BU es el quemado

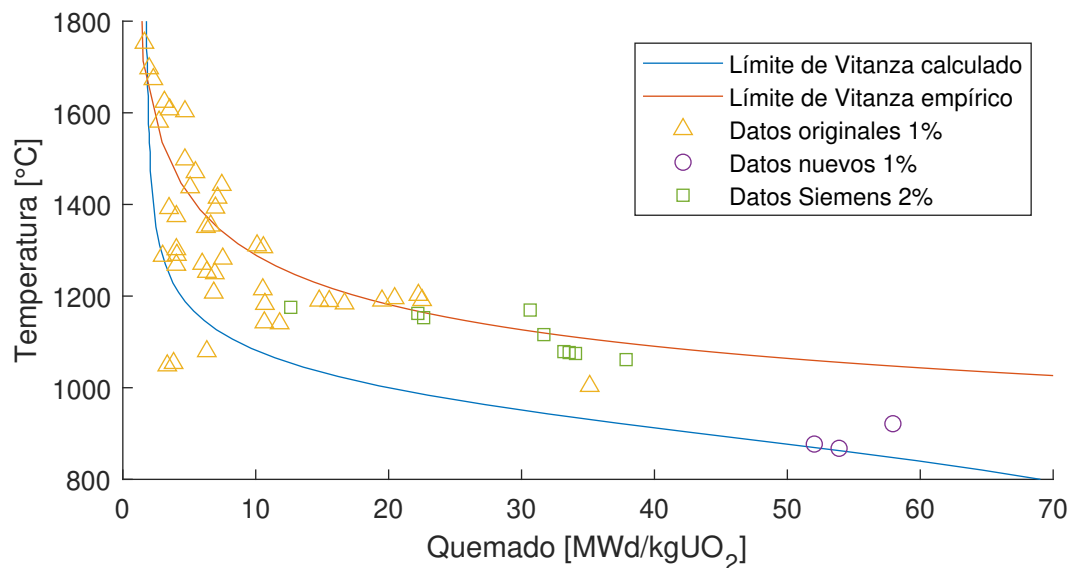


Figura 3.8: Límite de Vitanza para la liberación de gases de fisión.

(MWd/kgUO₂). En la Figura 3.8 se muestra el límite empírico dado por la Ecuación (3.20) y el límite calculado a partir del modelo de liberación de gases implementado. Además, se muestran también los datos experimentales que fueron utilizados para realizar el ajuste del límite empírico, obtenidos de las referencias [19-21] y donde el porcentaje indicado hace referencia al límite establecido experimentalmente para considerar el inicio de la liberación.

Por último, es importante mencionar que existen otros mecanismos de liberación de gases, denominados “mecanismos atérmicos”, ya que son independientes de la temperatura, y que no son tenidos en cuenta en este trabajo. Los principales mecanismos atérmicos son [21]:

- *Recoil*: Un fragmento de fisión que se encuentre cercano a una superficie libre (<6-7 μm) puede escapar del combustible debido a su alta energía cinética (60-100 MeV).
- *Knockout*: Cuando un fragmento de fisión realiza colisiones elásticas con los núcleos de los átomos de la matriz y comienza la cascada de daño, esta puede interactuar con productos gaseosos formados previamente en la red cristalina y eyectarlo si se encuentran cerca de la superficie.
- *Sputtering*: Un fragmento de fisión que se mueve a través del óxido va perdiendo energía, generando un pulso de calor localizado. Si esto ocurre cerca de la superficie, la zona calentada se evaporará, liberando cualquier producto de fisión contenido en la zona evaporada.

Estos mecanismos sólo pueden ser observados a temperaturas por debajo de los 1000 °C, donde los procesos térmicamente activados no tienen gran preponderancia. En general, se considera que no tienen mayor importancia a niveles intermedios de quemado; la fracción de liberación mediante mecanismos atérmicos está por debajo del 1 % para quemados de hasta 45 MWd/kgU [21].

3.1.5. Coeficiente de difusión en borde de grano

El coeficiente de difusión en borde de grano D_v es un parámetro de gran relevancia para el módulo de gas intergranular. La medición experimental de este coeficiente mediante técnicas de radiotrazadores resulta muy compleja, obteniéndose además discrepancias entre distintos estudios que pueden llegar a ser de hasta cinco órdenes de magnitud, dependiendo de la temperatura [22]. Por esta razón, se utilizan otras técnicas más convenientes para estimar D_v a partir de mediciones de procesos que involucren la difusión en bordes de grano.

Reynolds y Burton [22] realizan el cálculo de D_v a partir de mediciones obtenidas en procesos de sinterizado de cavidades intergranulares y creep por difusión. Con respecto al sinterizado, los autores siguen su evolución mediante mediciones de densidad y tamaño de los poros. Luego, a partir de la ecuación de la tasa de encogimiento de cada cavidad

dada por el modelo de Hull y Rimmer [23], es posible obtener D_v . Las mediciones de creep fueron realizadas en compresión, utilizando un dispositivo LVDT (*Linear variable differential transformer*) para medir las deformaciones. El coeficiente de difusión se puede obtener en este caso a partir de la velocidad de *creep*. Finalmente, el coeficiente de difusión en borde de grano obtenido por Reynolds y Burton resulta ser:

$$D_v = 1.38 \times 10^{-6} \exp\left(-\frac{2.39 \times 10^5}{8.31T}\right) \quad (3.21)$$

donde T es la temperatura absoluta (K).

Por otra parte, White [1] obtiene el coeficiente de difusión en borde de grano basándose en la absorción/emisión de vacancias en la interfaz borde de grano-burbujas intergranulares, utilizando el modelo de Speight y Beere [14]. Luego correlaciona estos resultados con mediciones experimentales de crecimiento de burbujas (hinchamiento) y relajación morfológica¹ (encogimiento). El coeficiente de difusión en borde de grano obtenido por White se puede expresar como:

$$D_v = 8.86 \times 10^{-6} \exp\left(-\frac{5.75 \times 10^{-19}}{k_B T}\right) \quad (3.22)$$

siendo k_B la constante de Boltzmann.

En la Figura 3.9 se grafican los coeficientes de difusión en borde de grano obtenidos por ambos autores, y los datos experimentales sobre los cuales basaron sus modelos.

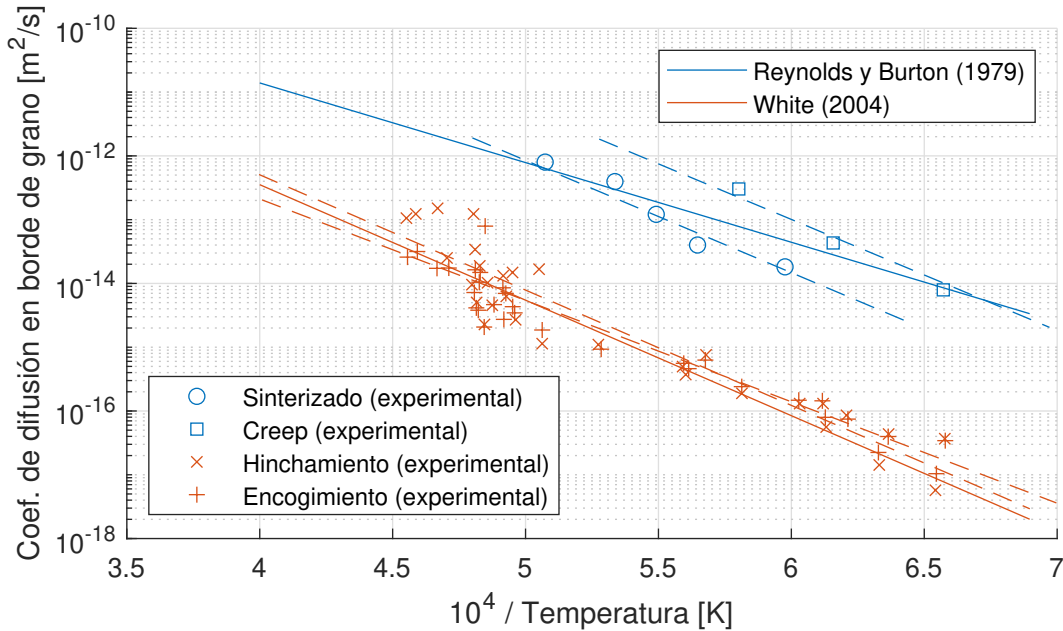


Figura 3.9: Coeficiente de difusión en borde de grano según distintos autores. Se considera un espesor de borde de grano $\delta_g = 0.35$ nm [25].

¹Cuando dos burbujas coalescen, la burbuja resultante será de forma “alargada” en un primer instante. Sin embargo, la energía superficial de la burbuja en este estado no es mínima con respecto al volumen que contiene, con lo cual la burbuja buscará minimizar esta energía cambiando su morfología de forma tal de ocupar nuevamente una proyección circular sobre el borde de grano. Este es el fenómeno de relajación morfológica, que impide la formación de burbujas extremadamente largas [24].

En primer lugar, se puede notar que los mecanismos de crecimiento y relajación morfológica presentan prácticamente el mismo comportamiento (líneas a trazos en color naranja), lo cual lleva a White a concluir que la difusión de vacancias a partir de los bordes de grano controla ambos procesos. Por otro lado, se puede notar una diferencia en la energía de activación de ambos estudios, dada por la pendiente del gráfico de Arrhenius. Esta diferencia se debe a que Reynolds y Burton hacen un ajuste utilizando los datos experimentales de sinterizado y creep combinados; si, en cambio, se realiza el ajuste de cada conjunto de datos por separado (líneas a trazos en color azul), se obtiene prácticamente la misma pendiente que el trabajo de White. Por último, se puede notar una diferencia de aproximadamente dos órdenes de magnitud en el coeficiente de difusión obtenido por ambos autores. Esta diferencia se encuentra dentro del rango de incertidumbre dado por Van Uffelen y Olander [26] para este parámetro.

3.1.6. Micro-fisuras en borde de grano

Si bien el principal mecanismo de liberación de gases de fisión en condiciones normales de operación es la difusión de átomos de gas a través de la matriz y su eventual liberación a partir de la interconexión de burbujas intergranulares, existe otro mecanismo que no involucra la difusión, y que es importante considerarlo en transitorios rápidos de potencia. Este mecanismo resulta en una liberación rápida de los gases de fisión (*burst release*) que no puede ser explicado mediante el proceso de difusión. Notley y MacEwan [27] y Carroll et al. [28] proponen que estos saltos repentinos en la liberación de gases durante transitorios se deben a micro-fisuras (*micro-cracking*) que se producen en los bordes de grano debido al efecto de las tensiones térmicas y la presión del gas de las burbujas. Las micro-fisuras producen una separación de los bordes de grano, haciendo que el gas que estaba contenido en los bordes de grano sea liberado rápidamente. Evidencia experimental obtenida en barras combustibles de UO_2 sometidas a transitorios de potencia respaldan esta teoría [29-32], con lo cual el mecanismo de micro-fisuras es el más aceptado actualmente.

El modelado computacional de este fenómeno para su aplicación en códigos de combustible resulta ser bastante complejo, con lo cual existen varios enfoques posibles. La mayoría de los trabajos publicados en la literatura [33-35] adoptan un enfoque empírico, mediante el cual se suma una contribución a la liberación de gases cuando se cumplen ciertas condiciones en la historia de potencia. A modo de ejemplo, el modelo de Hering [35] considera que el fenómeno de micro-fisuración ocurre en transitorios de potencia mayores a 50 W/cm, mientras que Koo et al. [34] consideran valores mayores a 35 W/cm. Por otra parte, Bernard et al. [36] proponen un modelo mediante el cual se reduce la concentración de gas intergranular luego de un transitorio de potencia de acuerdo a una ley exponencial.

En lo que respecta a este trabajo, se decidió implementar el modelo desarrollado por Barani et al. [37] que, a diferencia de los anteriores, no hace uso de límites empíricos en la potencia o la temperatura para dar cuenta del comienzo de la liberación rápida debido

a las micro-fisuras. De esta manera, se tiene una descripción física más adecuada para el comportamiento de los gases durante un transitorio de potencia. Por otra parte, este modelo permite extender de manera relativamente sencilla el modelo térmico o difusional de liberación de gases presentado en la Sección 3.1.4.

El modelo considera que el fenómeno de micro-fisuración afecta dos aspectos del comportamiento de los gases:

- a) Una pérdida del gas presente en las burbujas intergranulares. Macroscópicamente, se puede representar el gas presente en las burbujas a partir del parámetro de cobertura fraccional F (es decir, la fracción de superficie de borde de grano que se encuentra ocupada por burbujas). La pérdida de una fracción del gas contenido en el borde de grano se puede modelar aplicando un factor de escala f al parámetro F ; si se reduce la cobertura fraccional, se reduce la cantidad de gas retenida en el combustible, aumentando entonces la liberación de gases. Se puede interpretar microscópicamente a f como la fracción de borde de grano que se encuentra intacta, sin fisuras.
- b) Una pérdida en la capacidad del borde de grano de almacenar gas. Macroscópicamente, se puede representar la capacidad de almacenamiento de gas del borde de grano a partir del parámetro de cobertura fraccional de saturación, F_{sat} . Como se mencionó en la Sección 3.1.4, este parámetro es 0.5 en ausencia del fenómeno de micro-fisuración. Sin embargo, en presencia de micro-fisuras la capacidad de almacenar gas se hace cero. Entonces, se modela la pérdida de la capacidad de almacenar gas mediante un factor de escala f para F_{sat} . Además, los autores plantean la existencia de una recuperación progresiva de la capacidad de almacenar gas, y que depende únicamente del quemado.

Matemáticamente, se pueden expresar ambas condiciones como:

$$\frac{dF}{dt} = \left[\frac{dF}{dt} \right]_d + F \left[\frac{df}{dt} \right]_c \quad (3.23)$$

$$\frac{dF_{sat}}{dt} = F_{sat} \left(\left[\frac{df}{dt} \right]_c + \left[\frac{df}{dt} \right]_h \right) \quad (3.24)$$

donde el subíndice d denota procesos controlados por la difusión, c para micro-fisuras y h para la recuperación. Bajo la consideración de que la micro-fisuración sólo puede afectar bordes de grano que se encuentren intactos, se define la evolución del factor de escala f como:

$$\left[\frac{df}{dt} \right]_c = -\frac{dm_f}{dt} f \quad (3.25)$$

donde m_f es el parámetro de micro-fisuración. Este parámetro se construye empíricamente a partir del ajuste con datos experimentales de combustibles sometidos a transitorios de

potencia, y se la define como una función del tipo sigmoidal dependiente de la temperatura:

$$m_f(T) = 1 - \left[1 + Q \exp\left(s \frac{T - T_{\text{infl}}}{B}\right) \right]^{-\frac{1}{Q}} \quad (3.26)$$

con $s = \pm 1$ (+1 para calentamiento y -1 para enfriamiento), $B = 10$ K y $Q = 33$, T es la temperatura y T_{infl} es la temperatura en el punto de inflexión de la función $m_f(T)$. La elección de una función de este tipo está basada en evidencia experimental que indica que existe un comportamiento asimétrico con respecto a la temperatura de inflexión en los transitorios, observándose una mayor liberación a temperaturas mayores a la de inflexión para el calentamiento (y viceversa para el enfriamiento). En la Figura 3.10 se muestra el parámetro de micro-fisuración m_f y su derivada en función de la temperatura, tomando $T_{\text{infl}} = 1773$ K.

Con respecto a la temperatura de inflexión, se interpreta como aquella temperatura a la cual ocurre la máxima tasa de liberación de gases. Experimentalmente, se observa que esta temperatura es dependiente del quemado, y está dada por:

$$T_{\text{infl}} = \alpha + \beta \exp\left(-\frac{BU}{\gamma}\right) \quad (3.27)$$

con $\alpha = 1773$ K, $\beta = 520$ K, $\gamma = 10$ GWd/tU y BU (GWd/tU) es el quemado. En la Figura 3.11 se muestra la variación de la temperatura de inflexión con el quemado.

Por último, se considera que el efecto de recuperación de la capacidad de almacenamiento depende únicamente del quemado. Para caracterizar este proceso, se realiza un procedimiento análogo al parámetro de micro-fisuración, utilizando en este caso un parámetro de recuperación u .

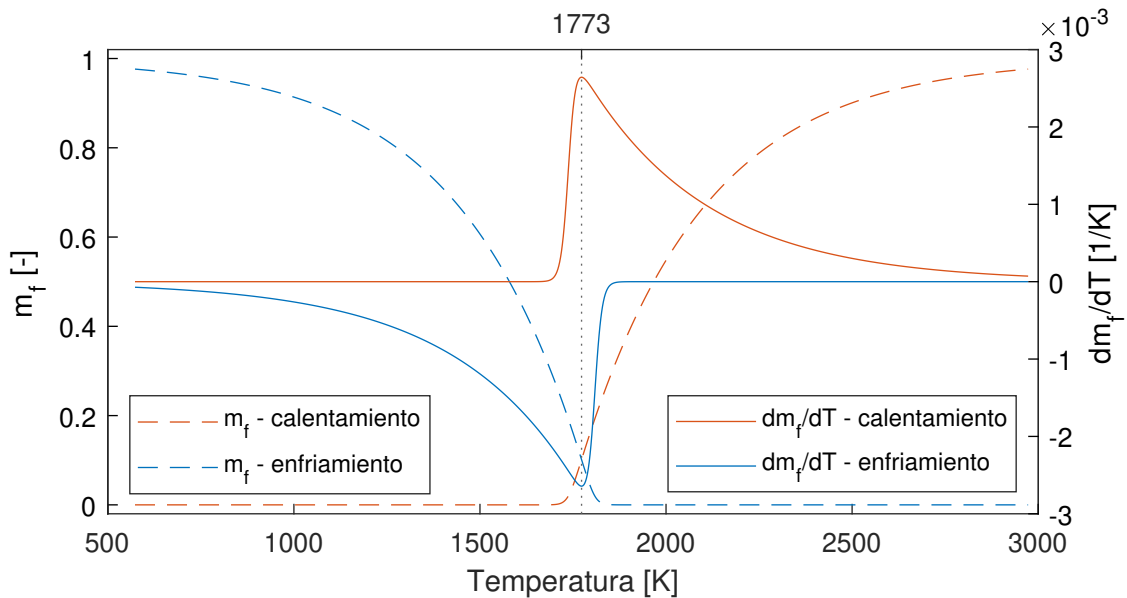


Figura 3.10: Parámetro de micro-fisuración m y su derivada, en función de la temperatura, para una temperatura de inflexión de 1773 K.

Considerando que este mecanismo puede afectar únicamente bordes de grano que se encuentran fisurados, se puede representar matemáticamente como:

$$\left[\frac{df}{dt} \right]_h = \frac{du}{dt} (1 - f) \quad (3.28)$$

donde el parámetro de recuperación u se define como:

$$u(BU) = \frac{BU}{\tau} \quad (3.29)$$

con $\tau = 1$ GWd/tU, lo cual se corresponde con una restauración del $\approx 99\%$ de la capacidad del borde de grano de almacenar gas después de 5 GWd/tU [35].

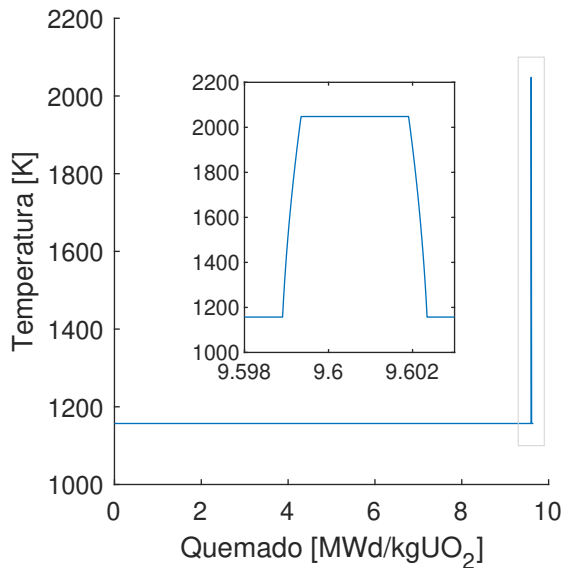


Figura 3.12: Historia de potencia con transitorio de calentamiento y enfriamiento.

considera el efecto de la presión hidrostática ($\sigma_h = 0$) y se considera un tamaño de grano constante de 10 μm .

En la Figura 3.13 se muestran los resultados de la simulación para esta historia de potencia, contemplando el caso con y sin el modelo de micro-fisuración. Se puede observar que, en primer lugar, no existe liberación de gases durante el período de irradiación base, debido a que la baja temperatura limita la movilidad de los átomos. Cuando se llega a la rampa de calentamiento, se tiene un aumento en la liberación de gases. En el modelo sin micro-fisuración, esto se produce por un aumento en la tasa de absorción de vacancias, así como también de la difusividad de los átomos de gas. Esto se traduce en una mayor

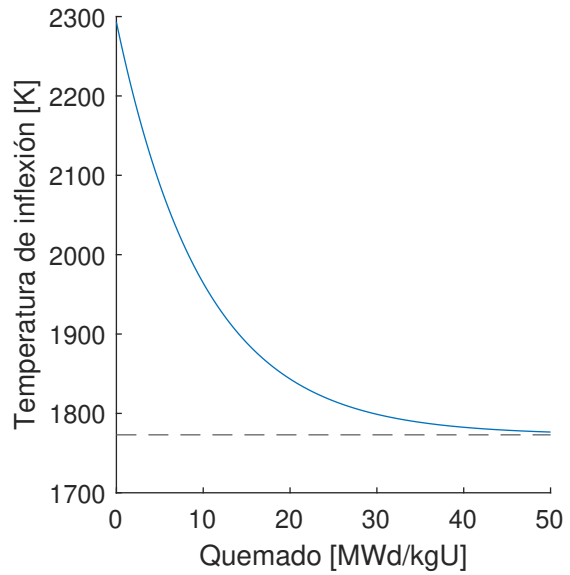


Figura 3.11: Dependencia de la temperatura de inflexión con el quemado.

A modo de ejemplo, y para comprobar la influencia del modelo de micro-fisuras en el modelo de liberación de gases difusional, se construyó la historia de potencia artificial que se muestra en la Figura 3.12. La misma cuenta con un período de irradiación base de 20000 horas, donde se tiene una temperatura constante de 1157 K, y luego se tiene una rampa de calentamiento de 30 minutos, donde se mantiene la temperatura a 2048 K durante dos horas, para finalmente disminuir la temperatura nuevamente a 1157 K en 30 minutos, y mantenerse a esa temperatura durante 100 horas.

Por otra parte, la historia de potencia no

concentración de átomos y vacancias en el borde de grano, incrementando el tamaño de las burbujas, generando que, luego de los procesos de coalescencia e interconexión, se liberen hacia el exterior del combustible. En el modelo con micro-fisuración se tiene una mayor fracción de gas liberado (aproximadamente, un 10 % más), ya que se le suma el gas que se libera por la separación de los bordes de grano. En el período en que la rampa se mantiene a una temperatura constante de 2048 K ambos modelos tienen el mismo comportamiento, ya que el fenómeno de micro-fisuración sólo se encuentra activo en transitorios de temperatura. Finalmente, se puede observar que existe una liberación de gases repentina nuevamente en el período del transitorio de enfriamiento, ya que el modelo de micro-fisuración está presente tanto en rampas de calentamiento como enfriamiento. Por otra parte, el modelo puramente difusivo no modifica su comportamiento frente a este tipo de transitorios.

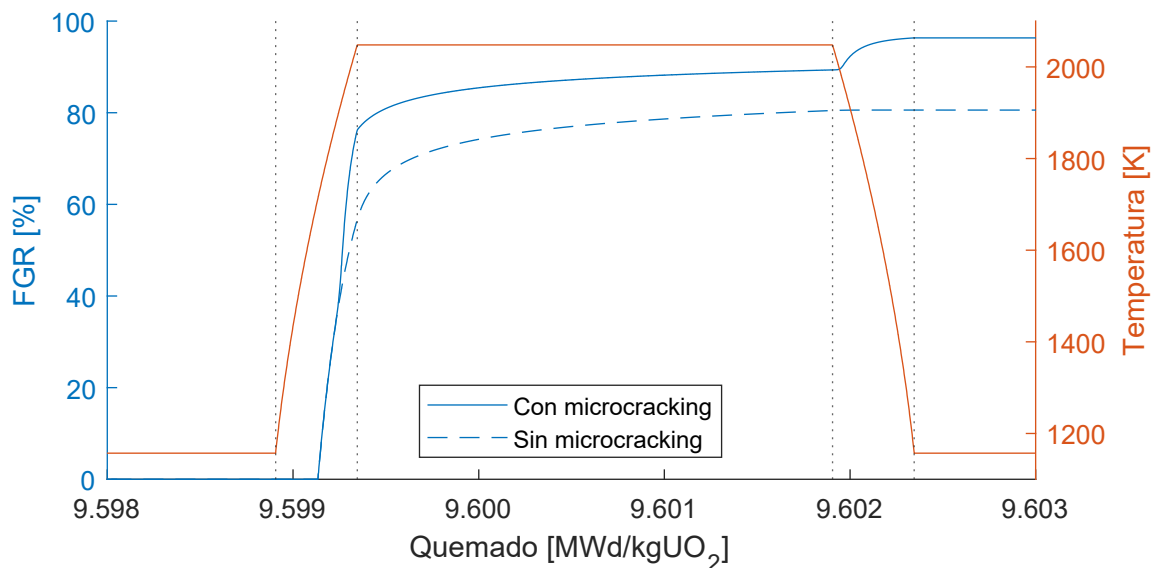


Figura 3.13: Comparación entre el modelo difusional y el modelo para transitorios de potencia que contempla el fenómeno de micro-fisuras en borde de grano.

3.2. Resultados

Con el objetivo de validar el modelo de hinchamiento debido a burbujas intergranulares se utilizará la base de datos provista por White et al. en el marco del AGR/Halden Ramp Test Programme [29]. Esta base de datos presenta un estudio exhaustivo de la población de burbujas intergranulares en combustibles de UO_2 sometidos a distintas condiciones de irradiación. Por otra parte, la liberación de gases de fisión (FGR) es validada mediante los resultados experimentales de Zimmermann [16, 38], quien presenta una base de datos para combustibles de UO_2 irradiados en condiciones isotérmicas. Para esta etapa de la validación, donde todavía no se tienen los modelos acoplados a un código de combustible general, es de vital importancia contar con una buena caracterización de los principales parámetros de entrada al modelo (principalmente, temperatura, tasa de fisiones, presión hidrostática y tamaño de grano inicial). Ambas bases de datos escogidas cumplen con estas condiciones. En la Sección 3.2.1 y 3.2.2 se presentan los resultados para el modelo de hinchamiento debido a burbujas intergranulares y la liberación de gases de fisión, respectivamente. Se realiza una breve descripción de ambas bases de datos experimentales, y luego se contrastan los resultados obtenidos a partir de los modelos con los resultados experimentales.

3.2.1. Modelo de hinchamiento intergranular

Datos experimentales

El AGR/Halden Ramp Test Programme [29] fue un trabajo realizado por encargo de la compañía British Energy Generation Ltd. con el objetivo de lograr una mejor comprensión de los procesos que contribuyen al hinchamiento de óxidos combustibles bajo irradiación, y su influencia en el fenómeno de interacción vaina-pastilla (PCMI). El combustible utilizado posee un enriquecimiento del 2-3%, con una densidad del 98% de la densidad teórica. Los combustibles fueron sometidos a un período de irradiación base hasta alcanzar quemados de entre 9 y 21 MWd/kgU aproximadamente, para luego ser sometidos a rampas de potencia en el reactor experimental de agua pesada en ebullición (BWR) Halden. Las rampas pueden ser clasificadas en rápidas (entre 1 y 2 minutos) y lentas (entre 50 y 70 minutos) o una combinación de ambas. Los combustibles son sometidos posteriormente a exámenes post-irradiación (PIE), donde son analizados mediante técnicas de microscopía electrónica entre 2 y 6 posiciones radiales del combustible. En la Tabla 3.1 se muestran detalles de cada experimento, junto con el número de bordes de grano y burbujas examinadas.

Para cada experimento presentado en la Tabla 3.1 se tienen datos de la concentración de burbujas, hinchamiento, radio proyectado y área proyectada, entre otros. En la Figura 3.14 se muestra un esquemático de una rampa típica. Las referencias para las potencias y tiempos considerados se muestran en la Tabla 3.2.

Tabla 3.1: Detalles de los experimentos y análisis SEM en el programa AGR/Halden Ramp Test.

ID	Quemado [GWd/tU]	Tipo de rampa	Zonas SEM	N° bordes de grano analizados	N° burbujas analizadas
4000C	20.7	Rápida	5	48	5043
4004G	20.5	Rápida	6	44	8010
4005F	20.8	Rápida	5	39	5905
4064A	20.1	Lenta	5	63	6704
4065K	9.25	Lenta	5	43	2817
4135E	15.0	Lenta + Rápida	3	15	2664
4136E	12.0	Lenta + Rápida	4	33	3094
4140A	12.0	Lenta	2	14	2743
4162E	12.6	Lenta	4	47	12031
4163E	12.6	Rápida	5	37	10596
Total			44	383	59607

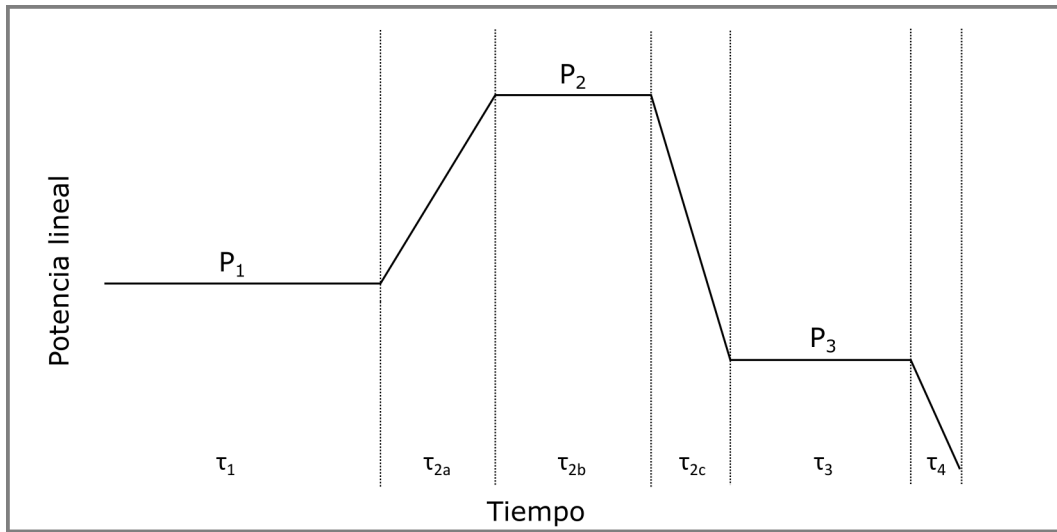


Figura 3.14: Esquema general de las rampas utilizadas en el programa HGR/Halden.

Tabla 3.2: Detalles de las rampas del programa AGR/Halden Ramp Test (d: días, m: minutos, s: segundos).

ID	N° Rampa	P ₁ [kW/m]	τ_1	τ_{2a}	P ₂ [kW/m]	τ_{2b}	τ_{2c}	P ₃ [kW/m]	τ_3	τ_4
4000C	1	14.0	12d	1.52m	40.0	30.0m	100s	14.0	99.0m	-
4004G	1	14.0	12d	1.97m	40.0	2.38m	90s	14.0	99.0m	-
4005F	1	14.0	12d	1.32m	40.0	2.0m	-	-	-	-
4064A	1	20.0	105d	47.0m	43.0	0.0	-	-	-	-
4065K	1	19.3	21d	47.0m	41.8	0.0	-	-	-	-
	1	18.5	7d	65.0m	36.9	0.0	40s	-	-	-
4135E	2	13.0	8.0m	40.0s	36.9	80s	40s	16.0	28d	6h
	3	13.0	0.0	40.0s	36.9	80s	40s	-	-	-
4136E	1	16.5	7d	63.0m	36.0	0.0	-	16.0	27d	6h
	2	36.0	0.0	120.0s	39.0	0.0	40s	-	-	-
4140A	1	16.5	7d	65.0m	36.0	0.0	40s	16.0	27d	6h
4162E	1	18.0	21d	45.0m	40.0	0.0	40s	18.0	6.0m	-
4163E	1	18.0	21d	2.0m	40.0	2.0m	80s	-	-	-

Por último, el programa presenta los valores de temperatura, tasa de fisiones, y presión hidrostática, con los cuales se puede generar la historia de potencia que se ingresa como

entrada para el modelo. Estos valores surgen a partir de cálculos realizados con el código de combustible ENIGMA [39], desarrollado por Central Electricity Generating Board y British Nuclear Fuels Ltd entre 1987 y 1991.

Comparación con el modelo

En las Figuras 3.15 a 3.17 se muestra la comparación entre los datos experimentales y los valores obtenidos mediante el cálculo numérico para el radio y la concentración de burbujas, así como también del hinchamiento volumétrico intergranular. Se puede observar, en general, un buen acuerdo entre ambos. Una excepción a esta tendencia son los experimentos 4135E, 4136E y 4140A, en los cuales el hinchamiento simulado resulta ser significativamente mayor que el medido experimentalmente. Estos experimentos tienen en común que los especímenes fueron retenidos dentro del reactor durante aproximadamente un mes luego de ser sometidos a las distintas rampas de potencia (ver Tabla 3.2), a diferencia del resto de los experimentos, que fueron retirados inmediatamente luego de ser sometidos a las rampas. El hecho de mantener los combustibles a bajas temperaturas durante largos períodos de tiempo puede resultar en una reducción de la cantidad de átomos de gas y vacancias en los poros intergranulares como resultado de la re-disolución inducida por irradiación, disminuyendo por consiguiente el hinchamiento [24]. Este fenómeno no es tenido en cuenta por el modelo actualmente, con lo cual se tiene una sobre-estimación del hinchamiento en estas condiciones de temperatura e irradiación.

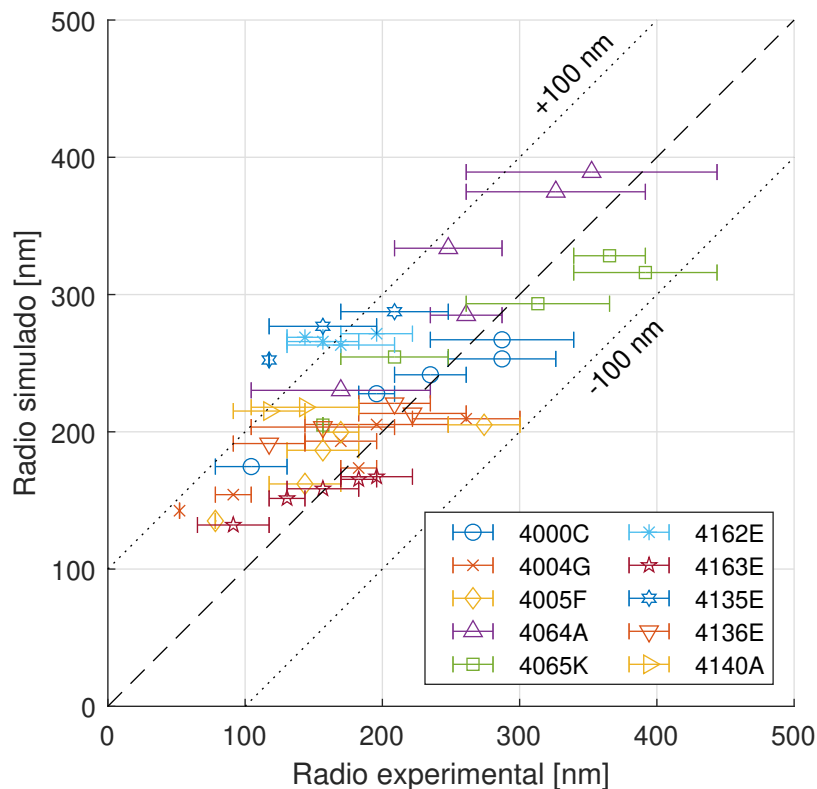


Figura 3.15: Datos experimentales vs. resultados simulados para el radio de las burbujas intergranulares. Las líneas punteadas representan el máximo error obtenido.

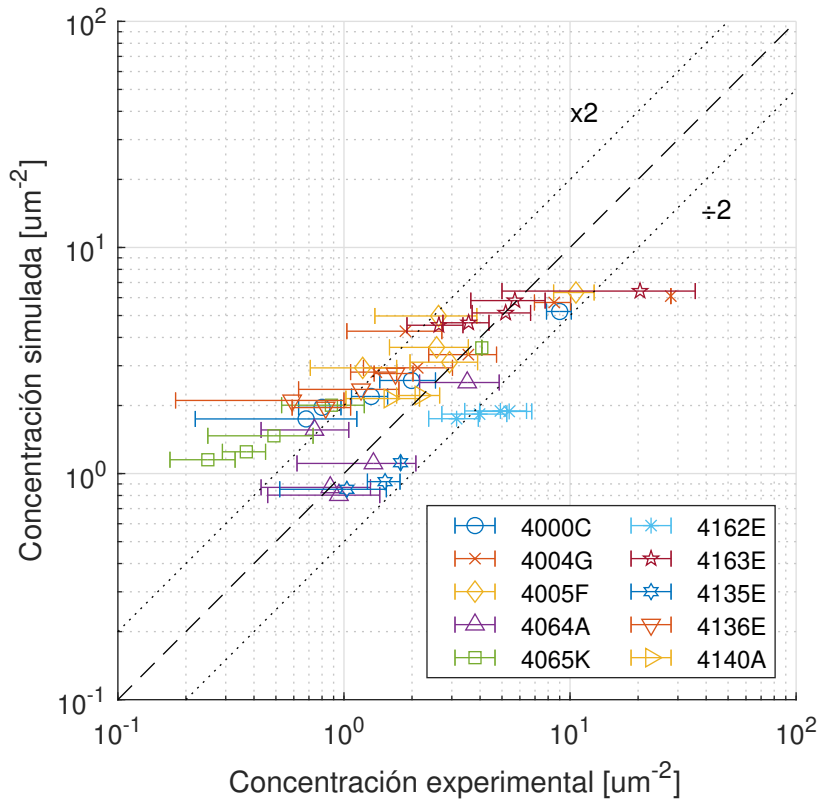


Figura 3.16: Datos experimentales vs. resultados simulados para la concentración de burbujas intergranulares. Las líneas punteadas representan desviaciones con un factor 2 en las medidas experimentales [40].

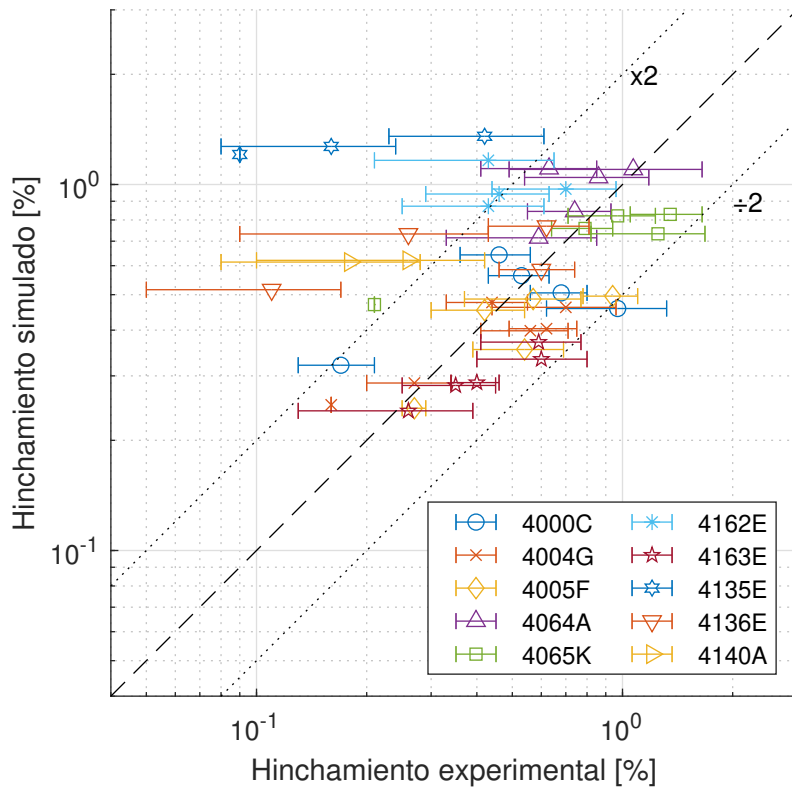


Figura 3.17: Datos experimentales vs. resultados simulados para el hinchamiento debido a las burbujas intergranulares. Las líneas punteadas representan desviaciones con un factor 2 en las medidas experimentales [40].

A modo de ejemplo, en las Figuras 3.18 a 3.20 se muestra la evolución del radio, la concentración y el hinchamiento para el experimento 4000C-C. El término C luego del guión hace referencia a la zona SEM estudiada experimentalmente (ver Tabla 3.1) dentro del experimento 4000C; las 5 zonas SEM analizadas se denominan A, B, C, D, F. Por otra parte, los gráficos también indican el valor experimental reportado por White al final del período de irradiación, con el correspondiente error asociado.

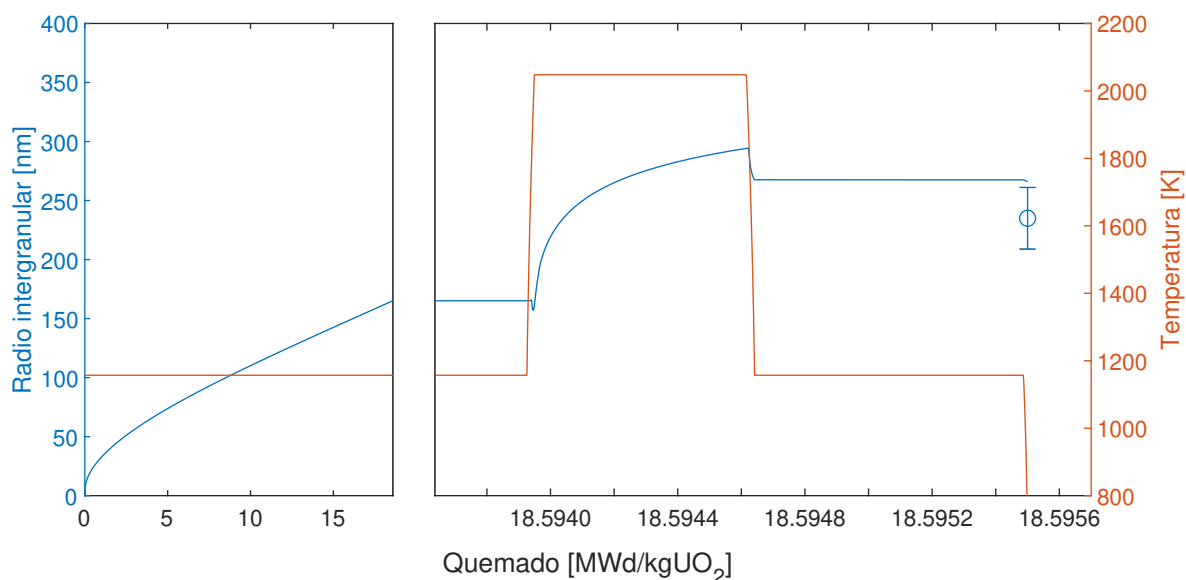


Figura 3.18: Evolución del radio de las burbujas intergranulares en el experimento 4000C-C.

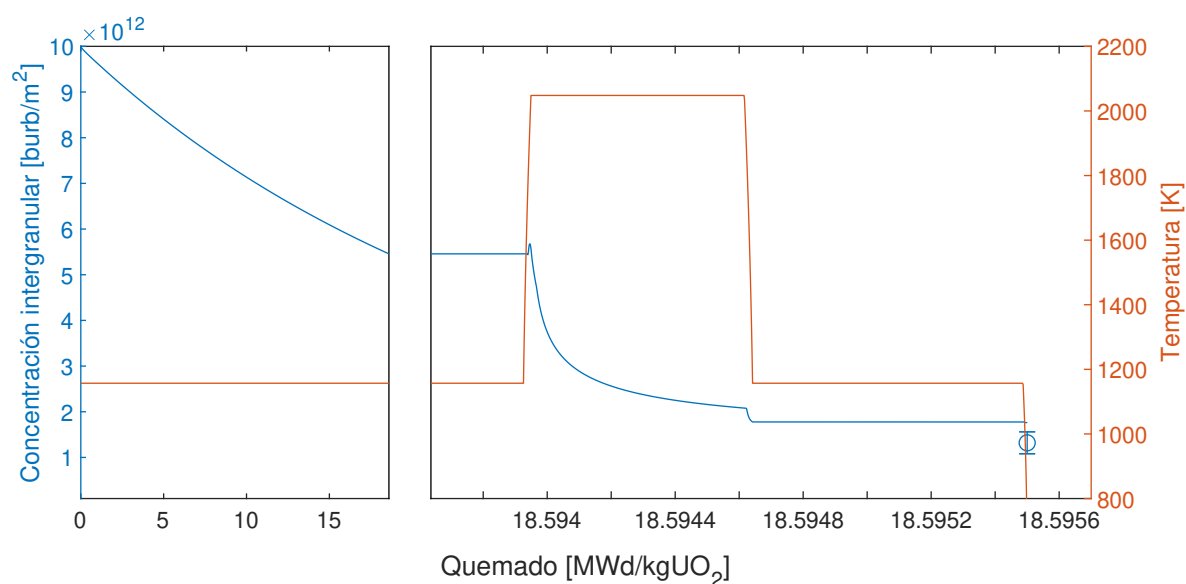


Figura 3.19: Evolución de la concentración de burbujas intergranulares en el experimento 4000C-C.

Como se puede observar, en el período de irradiación base la concentración de burbujas disminuye a partir del valor de concentración inicial de 1×10^{13} burbujas/m² como consecuencia del proceso de coalescencia, mientras que el radio de las burbujas aumenta debido tanto a los átomos de gas que arriban al borde de grano por los procesos de difusión, así

como también a la absorción de vacancias motorizada por la sobrepresurización de las burbujas. Esto genera un aumento continuo del hinchamiento.

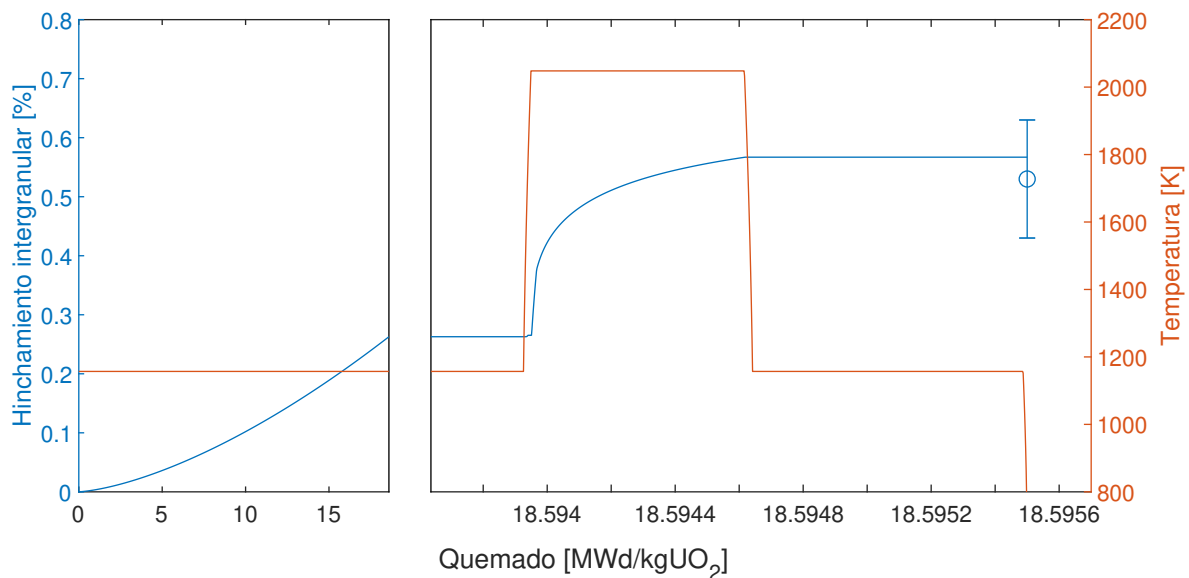


Figura 3.20: Evolución del hinchamiento intergranular en el experimento 4000C-C.

Una vez alcanzada la rampa de temperatura —donde se llega a una temperatura de, aproximadamente, 2000 K— el aumento significativo en los coeficientes de difusión en volumen y en borde de grano hace que el radio de las burbujas aumente a mayor velocidad. Asimismo, esto genera que la tasa de variación del área proyectada de la burbuja en el borde de grano sea mayor, con lo cual la concentración de burbujas va a decaer a un ritmo mayor que el del período de irradiación base. La consecuencia directa de ambos fenómenos es un aumento significativo de la tasa de hinchamiento en el corto período de tiempo de la rampa, haciendo que el hinchamiento intergranular se duplique, aproximadamente, con respecto al valor alcanzado en la irradiación base.

3.2.2. Modelo de liberación de gases de fisión

Datos experimentales

La base de datos de Zimmermann [16, 38] presenta resultados de liberación de gases de fisión para combustibles de UO_2 de alta densidad irradiados isotérmicamente hasta alcanzar varios grados de quemado, de 0.8 a 9.8 at %². Se utilizaron dos tipos distintos de cápsulas para la irradiación, mediante las cuales se pueden reproducir condiciones donde se contemple o no el efecto de la presión hidrostática. La base de datos cubre un amplio espectro de liberación de gases, con fracciones que van entre 1 y 95 %.

Con el objetivo de evaluar la influencia de las fluctuaciones de temperatura, y en base a la metodología propuesta por Van Uffelen [41], se realizaron las simulaciones con una temperatura promedio T_{avg} y una desviación ΔT (es decir, se consideraron las temperaturas

²Un nivel de quemado del 1 % de los átomos iniciales de uranio se corresponde aproximadamente a 8.27 MWd/kgUO₂.

$T_{avg} \pm \Delta T$, donde $\Delta T = T_{max} - T_{avg}$).

En la Tabla 3.3 se muestran las condiciones experimentales provistas por Zimmermann y que sirven como parámetros de entrada al modelo.

Tabla 3.3: Detalles de los datos experimentales de Zimmermann [38] utilizados para la validación del modelo de liberación de gases de fisión.

ID	Tiempo [días]	\dot{F} [fis/ $\mu\text{m}^3\text{s}$]	Quemado [at %]	T_{avg} [K]	T_{max} [K]	P_h [MPa]	FGR [%]
20	351	31	3.9	1300	1410	0	37.0
26	136	60	2.9	1290	1350	-2	1.0
10	38	50	0.8	1390	1430	0	5.0
12	183	43	2.9	1420	1490	0	49.0
13	183	51	3.4	1490	1550	0	52.5
21	351	37	4.6	1420	1460	0	29.3
28	141	57	2.9	1530	1560	-50	25.7
33	293	50	5.2	1490	1530	-2	68.8
36	387	49	6.8	1460	1490	-30	69.4
39	570	49	9.8	1450	1580	-2	84.3
40	570	47	9.4	1470	1570	-40	87.1
41	570	45	8.9	1490	1550	-40	87.6
11	44	57	1.0	1780	1840	0	34.5
14	183	56	3.8	1680	1800	0	62.0
16	274	39	3.8	1700	1750	0	85.2
17	274	46	4.5	1780	1820	0	74.6
23	351	43	5.4	1690	1820	0	67.5
27	136	63	3.1	1600	1780	-2	45.3
31	259	51	4.7	1620	1690	-50	62.7
32	259	54	5.0	1830	1950	-50	69.3
37	387	52	7.1	1620	1710	-2	83.9
19	274	55	5.3	1940	2050	0	85.0
22	351	40	5.0	2020	2140	0	87.0
35	293	55	5.7	1900	1990	-2	93.5
38	387	54	7.4	1920	2060	-2	94.3

Comparación con el modelo

En la Figura 3.21 se muestran los resultados para la liberación de gases de fisión simulados con el modelo, y su comparación con los resultados experimentales obtenidos por Zimmermann en condiciones isotérmicas. Se puede observar un buen acuerdo entre ambos, teniendo en cuenta que el rango de tolerancia asociado típicamente a predicciones de liberación de gases a partir de códigos de combustible consiste en un factor de ± 2 [25].

Por otra parte, también se puede observar que existen algunos puntos donde la temperatura tiende a tener mayor influencia (indicada por las mayores barras de error), mientras que en otros este no es el caso. Para investigar esta influencia de la temperatura, se eligen los puntos (a) y (b), correspondientes a los experimentos con ID 20 y 14 de la Tabla 3.3, respectivamente, y se grafica su evolución con respecto al quemado en la Figura 3.22. De esta manera, se pueden encontrar dos condiciones en las cuales la variación de temperatura tiene mayor influencia sobre los resultados de liberación de gases. En el caso (a), las condiciones de temperatura son tales que se encuentran próximas al comienzo del proce-

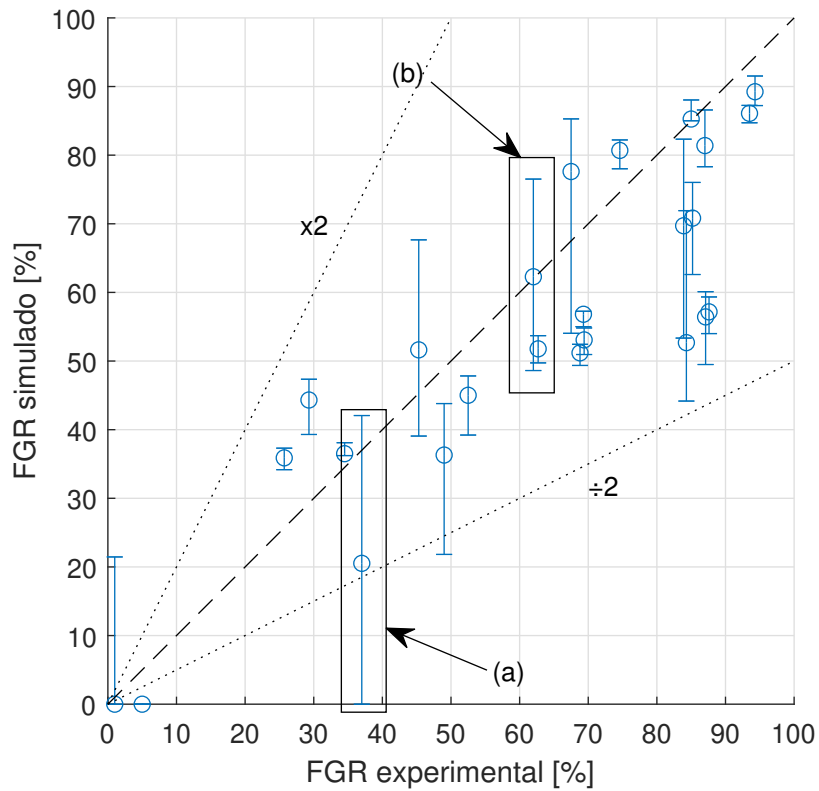


Figura 3.21: Datos experimentales vs. resultados simulados para la liberación de gases de fisión (FGR).

so de liberación de gases. Como se puede observar, a la temperatura de 1190 K no hay liberación, mientras que a 1300 y 1410 K existe liberación. A estas temperaturas relativa-

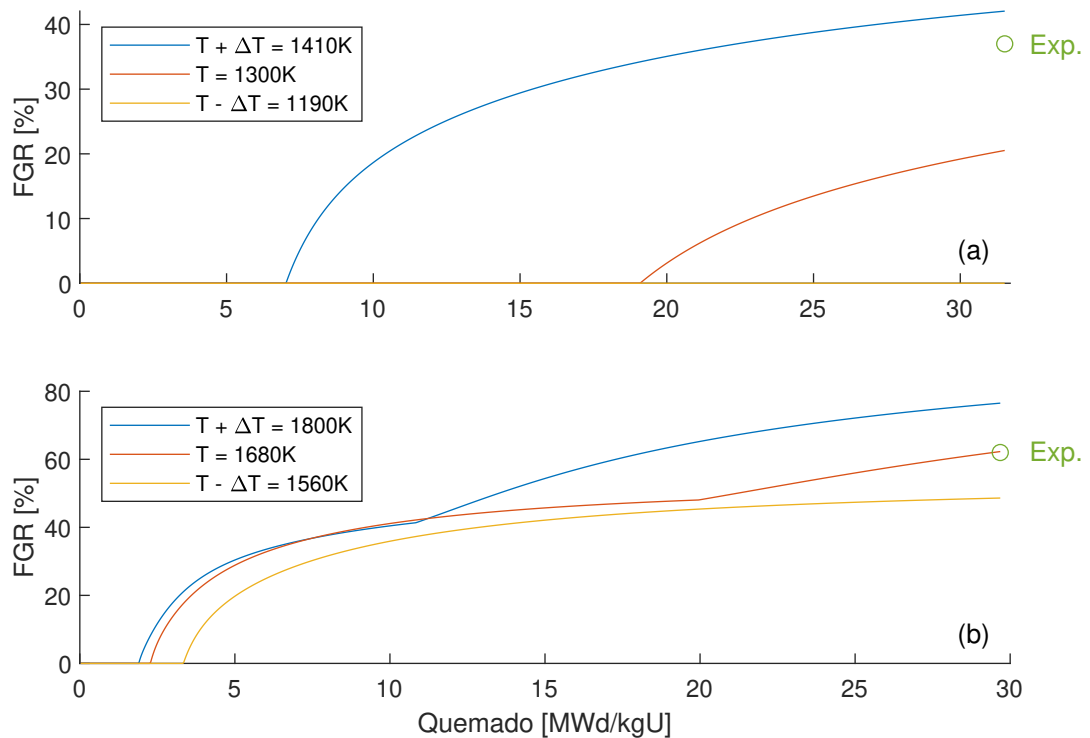


Figura 3.22: Influencia de la temperatura en la liberación de gases para los experimentos (a) ID 20 y (b) ID 14 de la base de datos de Zimmermann.

mente bajas, las diferencias relativas de tiempo de incubación y cantidad de gas liberado resultan ser significativas, lo cual conlleva al aumento de la variabilidad en la liberación de gases con respecto a la temperatura. Por otra parte, en el caso (b) la diferencia se explica a partir del mínimo límite para la concentración de burbujas intergranulares. A una temperatura de 1190 K este límite todavía no es alcanzado, mientras que a 1680 y 1800 K sí. Cuando se alcanza este límite, la liberación de gases se comienza a dar a una tasa mucho mayor, lo cual explica la mayor variabilidad en los resultados.

Referencias

- [1] R. J. White. “The development of grain-face porosity in irradiated oxide fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 325 (2004), págs. 61-77.
- [2] J. A. Turnbull y M. O. Tucker. “Swelling in UO_2 under conditions of gas release”. *Philosophical Magazine* 30:1 (1974), págs. 47-63.
- [3] S. Kashibe y K. Une. “Effect of external restraint on bubble swelling in UO_2 fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 247 (1997), págs. 138-146.
- [4] A. R. Massih y K. Forsberg. “Calculation of grain boundary gaseous swelling in UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 377 (2008), págs. 406-408.
- [5] R. J. M. Konings, ed. *Comprehensive Nuclear Materials, Volume 3: Advanced Fuels/Fuel Cladding/Nuclear Fuel Performance Modeling and Simulation, Chapter 3.20: Modeling of Fission-Gas-Induced Swelling of Nuclear Fuels*. Elsevier Science, 2012.
- [6] J. Rest. “The effect of irradiation-induced gas-atom re-resolution on grain-boundary bubble growth”. *Journal of Nuclear Materials* 321 (2003), págs. 305-312.
- [7] G. Pastore, L. Luzzi, V. Di Marcello y P. Van Uffelen. “Physics-based modelling of fission gas swelling and release in UO_2 applied to integral fuel rod analysis”. *Nuclear Engineering and Design* 256 (2013), págs. 75-86.
- [8] G. L. Reynolds, W. B. Beeré y P. T. Sawbridge. “The effect of fission products on the ratio of grain-boundary energy to surface energy in irradiated uranium dioxide”. *Journal of Nuclear Materials* 41 (1971), págs. 112-114.
- [9] J. R. Matthews y M. H. Wood. “A simple operational gas release and swelling model, II. Grain boundary gas”. *Journal of Nuclear Materials* 91 (1980), págs. 241-256.
- [10] T. Kogai. “Modelling of fission gas release and gaseous swelling of light water reactor fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 244 (1997), págs. 131-140.
- [11] M. S. Veshchunov. “Modelling of grain face bubbles coalescence in irradiated UO_2 fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 374 (2008), págs. 44-53.
- [12] K. Une y S. Kashibe. “Fission gas release during post irradiation annealing of BWR fuels”. *Journal of Nuclear Science and Technology* 27(11) (1990), págs. 1002-1016.
- [13] C. T. Walker y M. Mogensen. “On the rate determining step in fission gas release from high burn-up water reactor fuel during power transients”. *Journal of Nuclear Materials* 149 (1987), págs. 121-131.
- [14] M. V. Speight y W. Beere. “Vacancy potential and void growth on grain boundaries”. *Metal Science* 9 (1975), págs. 190-191.
- [15] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. Technical Information Center, Office of Public Affairs, Energy Research and Development Administration, 1976. Cap. 13.
- [16] H. Zimmermann. “Investigations on swelling and fission gas behaviour in uranium dioxide”. *Journal of Nuclear Materials* 75 (1978), págs. 154-161.
- [17] S. Chandrasekhar. “Stochastic problems in Physics and Astronomy”. *Review of Modern Physics* 15 (1943), págs. 1-89.
- [18] Idaho National Laboratory. *BISON: A Finite Element-Based Nuclear Fuel Performance Code*. 2022. URL: <https://mooseframework.inl.gov/bison/>.

- [19] C. Vitanza, U. Graziani, N. T. Fordestrommen y K. O. Vilpponen. *Fission Gas Release from In-Pile Measurements*. Inf. téc. HPR-221.10. California, United States: OECD Halden Reactor Project, 1978.
- [20] C. Vitanza, E. Kolstad y C. Graziani. “Fission gas release from UO₂ pellet at high burnup”. Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance. American Nuclear Society. Oregon, United States, 1979.
- [21] R. J. M. Konings, ed. *Comprehensive Nuclear Materials, Volume 3: Advanced Fuels/Fuel Cladding/Nuclear Fuel Performance Modeling and Simulation, Chapter 3.19: Oxide Fuel Performance Modeling and Simulations*. Elsevier Science, 2012.
- [22] G. L. Reynolds y B. Burton. “Grain-boundary diffusion in uranium dioxide: the correlation between sintering and creep and a reinterpretation of creep mechanism”. *Journal of Nuclear Materials* 82 (1979), págs. 22-25.
- [23] D. Hull y D. E. Rimmer. “The growth of grain-boundary voids under stress”. *The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical Experimental and Applied Physics* 4 (1959), págs. 673-687.
- [24] R. J. White. “The reduction of fission gas swelling through irradiation-induced re-resolution”. Seminar: Pellet-clad Interaction in Water Reactor Fuels. Nuclear Energy Agency. Aix-en-Provence, Francia, 2005.
- [25] G. Pastore, L. P. Swiler, J. D. Hales, S. R. Novascone, D. M. Perez, B. W. Spencer, L. Luzzi, P. Van Uffelen y R. L. Williamson. “Uncertainty and sensitivity analysis of fission gas behavior in engineering-scale fuel modeling”. *Journal of Nuclear Materials* 456 (2015), págs. 398-408.
- [26] D. R. Olander y P. Van Uffelen. “On the role of grain boundary diffusion in fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* 288 (2001), págs. 137-147.
- [27] M. J. F. Notley y J. R. MacEwan. “Stepwise release of fission gas from UO₂ fuel”. *Nuclear Applications* 2 (1966), págs. 477-480.
- [28] R. M. Carroll, J. G. Morgan, R. B. Perez y O. Sisman. “Fission density, burnup, and temperature effects on fission-gas release from UO₂”. *Nuclear Science and Technology* 38 (1969), págs. 143-155.
- [29] R. J. White, R. C. Corcoran y P. J. Barnes. *A Summary of Swelling Data Obtained from the AGR/Halden Ramp Test Programme*. Inf. téc. R&T/NG/EXT/REP/0206/02, Issue 5. British Energy Generation Ltd, 2006.
- [30] I. J. Hastings, A. D. Smith, P. J. Fehrenbach y T. J. Carter. “Fission gas release from power-ramped UO₂ fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 139 (1986), págs. 106-112.
- [31] C. T. Walker, P. Knappik y M. Mogensen. “Concerning the development of grain face bubbles and fission gas release in UO₂ fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 160 (1988), págs. 10-23.
- [32] J. Rest y S. M. Gehl. “The mechanistic prediction of transient fission-gas release from LWR fuel”. *Nuclear Engineering and Design* 56 (1980), págs. 233-256.
- [33] P. Van Uffelen, A. Schubert, J. Van de Laar y C. Gyóri. “Development of a transient fission gas release model for TRANSURANUS”. Water Reactor Fuel Performance Meeting. Korean Nuclear Society, Atomic Energy Society of Japan, Chinese Nuclear Society, European Nuclear Society y American Nuclear Society. Seoul, Korea, 2008.
- [34] Y. H. Koo, B. Lee y D. S. Sohn. “COSMOS: A computer code to analyze LWR UO₂ and MOX fuel up to high burnup”. *Annals of Nuclear Energy* 26 (1999), págs. 47-67.
- [35] W. Hering. “The KWU fission gas release model for LWR fuel rods”. *Journal of Nuclear Materials* 114 (1983), págs. 41-49.

- [36] L. C. Bernard, J. L. Jacoud y P. Vesco. “An efficient model for the analysis of fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* 302 (2002), págs. 125-134.
- [37] T. Barani, E. Bruschi, D. Pizzocri, G. Pastore, P. Van Uffelen, R. L. Williamson y L. Luzzi. “Analysis of transient fission gas behaviour in oxide fuel using BISON and TRANSURANUS”. *Journal of Nuclear Materials* 486 (2017), págs. 96-110.
- [38] H. Zimmermann. *Untersuchungen zum schwellen und spaltgasverhalten in oxidischem kernbrennstoff unter neutronenbestrahlung*. Inf. téc. KFK 2467. Karlsruhe, Alemania: Karlsruhe Research Center, 1977.
- [39] P. A. Jackson, J. A. Turnbull y R. J. White. “Enigma fuel performance code”. *Nuclear Energy* 29, 2 (1990), págs. 107-114.
- [40] D. Pizzocri, G. Pastore, T. Barani, A. Magni, L. Luzzi, P. Van Uffelen, S. A. Pitts, A. Alfonsi y J. D. Hales. “A model describing intra-granular fission gas behaviour in oxide fuel for advanced engineering tools”. *Journal of Nuclear Materials* 502 (2018), págs. 323-330.
- [41] P. Van Uffelen. “Contribution to the Modelling of Fission Gas Release in Light Water Reactor Fuel”. Tesis de doctorado. Université de Liège, Faculté des Sciences Appliquées, Département des centrales nucléaires, 2002.

4. Productos sólidos de fisión

Como ya fue mencionado en secciones previas, durante la irradiación los átomos pesados de uranio y plutonio se dividen en átomos más livianos, denominados productos de fisión. En general, se suele considerar por separado el hinchamiento debido a productos de fisión gaseosos como el Xe y el Kr (tratados en las Secciones 2 y 3) y el resto de los productos de fisión sólidos debido a su incapacidad de precipitar en forma de burbujas. A diferencia del caso de productos de fisión gaseosos, no existen modelos mecanísticos para evaluar el hinchamiento debido a productos sólidos de fisión. Todos los códigos de combustible actuales utilizan métodos empíricos que están basados en datos experimentales obtenidos en distintas condiciones de operación y para distintos niveles de quemado. Si bien en los últimos años se han publicado algunos trabajos para darle un tratamiento mecanístico al problema [1], estos modelos no se encuentran aún lo suficientemente desarrollados como para su inclusión en códigos de combustible.

Con respecto al comportamiento de los productos de fisión sólidos, se puede notar que algunos son estables y se acumulan en el combustible, mientras que otros son radiactivos y decaen en nuevas especies, y otros capturan neutrones generando especies estables o inestables. Luego, se puede concluir que la composición del combustible va a ir variando a lo largo del período de irradiación de acuerdo a un complejo patrón que tiene en cuenta este tipo de comportamiento. Sin embargo, si se asume una tasa de fisiones constante, el quemado resulta ser una función lineal con respecto al tiempo de irradiación. Bajo estas condiciones, para cada nivel de quemado las concentraciones relativas de cada producto sólido de fisión (tanto de U-235 como Pu-239) no difieren significativamente, con lo cual la concentración aumenta linealmente con el quemado. Por esta razón, todos los modelos empíricos de hinchamiento por productos sólidos de fisión consideran que el hinchamiento aumenta linealmente con el quemado, a una determinada *tasa de hinchamiento*. Estos modelos son presentados en la Sección 4.1.

Anselin [2] realiza la siguiente categorización de los productos de fisión sólidos:

- a) Productos de fisión solubles: Son aquellos productos de fisión que forman soluciones sólidas con el óxido de metal pesado. Se pueden mencionar el Y, Zr, La, las tierras raras (Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd) y la fracción de Mo presente como óxido. Consideraciones teóricas que luego fueron verificadas experimentalmente [2] demuestran que el parámetro de red del UO_2 se mantiene aproximadamente igual en presencia de este tipo de productos sólidos.
- b) Inclusiones metálicas: Las inclusiones metálicas Mo, Ru, Tc, Rh, Pd poseen similares propiedades químicas, por lo cual se asume que se mezclan de manera ideal (es decir, el volumen de la mezcla es igual a la suma del volumen de las fases puras que contiene

la aleación).

- c) Inclusiones de óxidos alcalinotérreos: Consiste en zirconato de bario (BaZrO_3) y de estroncio (SrZrO_3).
- d) Otros productos de fisión: Se incluyen los elementos I y Te, los metales alcalinos Cs y Rb, y otros productos sólidos que tienen un rendimiento muy bajo (como el Ge, As, Se, Br, Ag, Cd, In, Sn y Sb). Se asume que estas especies están presentes como sólidos iónicos en el combustible irradiado.

Luego, si el hinchamiento se define como el incremento fraccional del volumen del sólido con respecto al volumen inicial de fabricación, se tiene:

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{\text{prod.sólidos}} = \frac{V - V^0}{V^0} \quad (4.1)$$

donde V^0 es el volumen inicial del combustible y V es el volumen después de alcanzar un quemado BU . El volumen final V incluye tanto la matriz de óxido, como los productos de fisión solubles, las inclusiones metálicas, las fases correspondientes a óxidos alcalinotérreos y otros productos de fisión. La fase gaseosa que contiene los productos de fisión volátiles (Xe, Kr) no se tiene en cuenta en esta ecuación. La Ecuación (4.1) se puede escribir como [2]:

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{\text{prod.sólidos}} = \left(\sum_{\text{prod.sol.}} Y_i \frac{v_i}{v_U} - 1\right) BU \quad (4.2)$$

donde Y_i es el rendimiento de cada producto de fisión, v_i es el volumen parcial del producto de fisión considerado (es decir, el volumen asociado con cada átomo de producto de fisión, incluyendo los átomos de oxígeno asociados en caso de existir), y v_U el volumen de cada molécula de UO_2 (se asume que es igual al volumen del PuO_2). En consecuencia, si se conocen los rendimientos y el volumen parcial de cada producto de fisión, es posible calcular la tasa de hinchamiento a partir de la Ecuación (4.2).

Es importante tener en cuenta las limitaciones de este planteo. En primer lugar, no se tiene en cuenta la migración de los productos sólidos de fisión. Sin embargo, hay evidencia que algunos productos sólidos pueden migrar en presencia de gradientes de temperatura elevados [3]. Esto puede influir en el valor calculado en la línea central del combustible (donde se registran las mayores temperaturas) o en la zona más cercana a la superficie. Por otra parte, el estado químico y físico de algunos de los productos sólidos mencionados están sujetos a un nivel de incertidumbre considerable. A modo de ejemplo, si se considera que el molibdeno se encuentra presente en el combustible como óxido de molibdeno soluble (MoO_2) en lugar de encontrarse en forma de inclusión metálica (Mo), se generaría un aumento del 46% en la tasa de hinchamiento [3]. Por estas razones, se suele considerar una banda de incertidumbre de $\pm 50\%$ en el valor de hinchamiento calculado.

4.1. Modelo del comportamiento de los productos sólidos

Los cambios volumétricos que se producen debido a la generación de productos sólidos de fisión son difíciles de medir experimentalmente. En los primeros trabajos realizados sobre esta temática se buscaba determinar las cantidades relativas de cada producto sólido (tanto elementos puros como en forma de compuestos), así como también su estado químico y su posición dentro del combustible. En la Tabla 4.1 se muestra un resumen de los resultados obtenidos por distintos autores con respecto a la tasa de hinchamiento debido a los productos sólidos de fisión.

Tabla 4.1: Tasa de hinchamiento por productos sólidos de fisión de acuerdo a distintos autores.

Ref.	Autor	Año	Tasa de hinchamiento [por cada 10^{26} fisiones/m ³]
[2]	Anselin ¹	1969	0.35 % $\Delta V/V$
[3]	Olander ²	1976	0.32 % $\Delta V/V$
[4]	Harrison y Davies ³	1968	0.42 % $\Delta V/V$
[5]	Rowland et al.	1974	0.40 % $\Delta V/V$
[6]	Frost	1969	0.21 % $\Delta V/V$
[7]	Whapman y Sheldon	1966	0.20 % $\Delta V/V$

En base a los resultados de la Tabla 4.1, el modelo propuesto en 1993 por el manual MATPRO [8] considera que una tasa de hinchamiento de 0.25 % $\Delta V/V$ por cada 10^{26} fisiones/m³ es la que mejor se adecúa a condiciones de bajo y alto quemado. Luego, la expresión para calcular el hinchamiento debido a productos sólidos de fisión es:

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{prod.solidos} = 2.5 \times 10^{-29} BU \quad (4.3)$$

donde BU es el quemado durante un paso de tiempo (fisiones/m³). Si se considera el quemado en unidades de MWs/kgU, la ecuación que representa el incremento volumétrico del hinchamiento debido a los productos sólidos de fisión es:

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{prod.solidos} = 7.435 \times 10^{-13} \rho \Delta BU \quad (4.4)$$

donde ρ es la densidad inicial del combustible (kg/m³) y ΔBU es el incremento del quemado (MWs/kgU), es decir, la diferencia entre el quemado en el paso de tiempo actual y el quemado en el paso de tiempo anterior. Se puede notar que, si se considera un valor típico de un combustible de UO₂ con un 95 % de la densidad teórica (10 970 kg/m³), se obtiene una tasa de 0.669 % por cada 10 MWd/kgU.

¹La tasa de hinchamiento propuesta por Anselin es un valor promedio, teniendo en cuenta que no hay un único valor (depende de las condiciones de irradiación, así como también del diseño y las propiedades del combustible). Anselin encuentra un tasa mínima de 0.13 % $\Delta V/V$ y una tasa máxima de 0.54 % $\Delta V/V$ por 10^{26} fisiones/m³.

²El cálculo realizado por Olander no tiene en cuenta la migración de los productos sólidos de fisión, y está influenciado por la incertidumbre en los estados físicos y químicos de los mismos, lo cual conduce a una banda de error de ± 50 % del valor pronosticado.

³Harrison y Davies analizan la tasa de hinchamiento en función del flujo de neutrones térmicos. El valor que se reporta es un valor promedio entre los 0.45 y 0.39 % $\Delta V/V$ por 10^{26} fisiones/m³ que encuentran para flujos neutrónicos de 10^{18} y 10^{21} neutrones/m²s, respectivamente.

El modelo del MATPRO fue actualizado en 1997 en el marco del proyecto FRAPCON-3 [9], a cargo de la Comisión Regulatoria Nuclear de los Estados Unidos, en el cual se presentan una serie de modificaciones a modelos y propiedades de materiales para extender su uso a aplicaciones de alto quemado. Las nuevas correlaciones fueron generadas a partir de mediciones de densidad en combustibles irradiados en reactores comerciales de agua presurizada (PWRs), en los cuales se alcanzaron quemados de entre 20 y 70 MWd/kgU. Las mediciones, realizadas por Dideon [10], Newman [11], Smith et al. [12] y Garde [13], dieron tasas de hinchamiento que variaban entre 0.7 y 1.0 % por cada 10 MWd/kgU. Se puede notar que las tasas obtenidas son mayores a la indicada por el MATPRO, y además son similares a la tasa obtenida en el reactor de investigación Halden con combustibles instrumentados para medir la elongación de la pila (1.0 % por cada 10 MWd/kgU) [9]. En base a esta información, se realizó un ajuste lineal de los datos mediante el método de cuadrados mínimos, con lo cual se obtiene una función lineal cuya pendiente es de 0.770 % por cada 10 MWd/kgU. La ecuación que representa el hinchamiento debido a productos sólidos resulta ser:

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{prod.solidos} = 2.875 \times 10^{-29} BU \quad (4.5)$$

La Ecuación (4.5) es válida para combustibles de UO_2 o $(U,Pu)O_2$, quemados de entre 0 y 70 MWd/kgU, y a temperaturas de entre 300 y 2000 K.

El modelo de hinchamiento del FRAPCON-3 fue actualizado nuevamente en el año 2010, cuando se publica la nueva versión FRAPCON-3.4 [14]. En esta versión, se disminuye la tasa de hinchamiento de 0.770 % a 0.620 % por cada 10 MWd/kgU para quemados menores a 80 MWd/kgU, y se incrementa la tasa de hinchamiento a 0.860 % por cada 10 MWd/kgU para quemados mayores a 80 MWd/kgU. De esta manera, se extiende la validez del modelo hasta quemados de 100 MWd/kgU. Por otra parte, se agrega un parámetro ajustable para controlar el error del modelo para ser utilizado en análisis de sensibilidad. La correlación resulta ser entonces:

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{prod.solidos} = \begin{cases} \eta(2.315 \times 10^{-23} + \kappa 2.315 \times 10^{-24}) & \text{si } BU < 80 \text{ MWd/kgU} \\ \eta(3.211 \times 10^{-23} + \kappa 3.211 \times 10^{-24}) & \text{si } BU > 80 \text{ MWd/kgU} \end{cases} \quad (4.6)$$

donde κ es un parámetro definido por el usuario para controlar el error (por ejemplo, $\kappa = 1$ introduce un error de +10 %), y η es un término análogo a la Ecuación (4.4), que se define como:

$$\eta = 2.974 \times 10^{10} \rho \Delta BU \quad (4.7)$$

Esta versión de modelo de hinchamiento por productos sólidos de fisión se encuentra vigente en la actualidad, con la publicación más reciente de la versión 4.0 del manual FRAPCON [15].

En la Figura 4.1 se muestra una comparación entre tres de los modelos de hinchamiento por productos sólidos presentados previamente. Para el modelo de Olander, y en base al

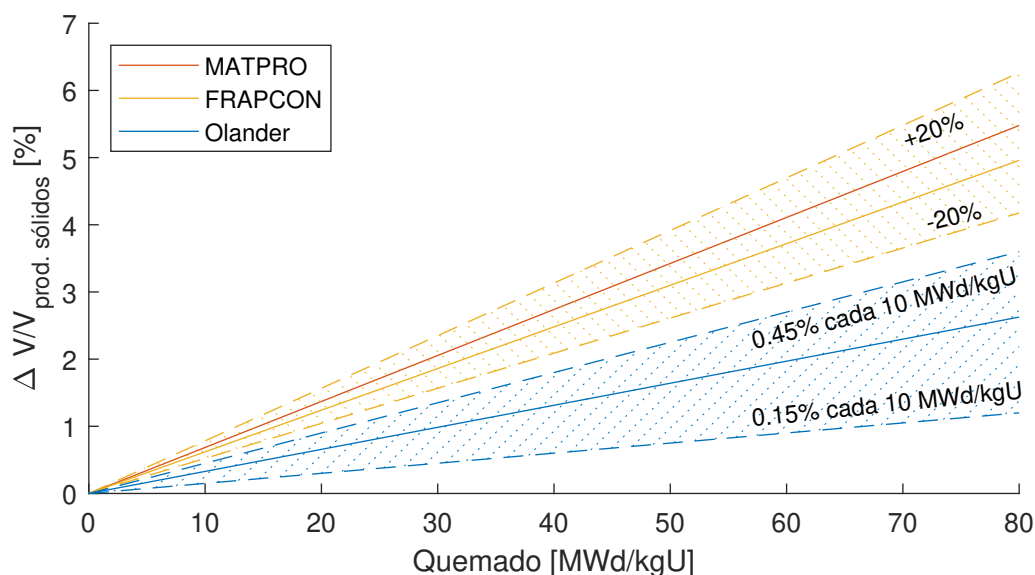


Figura 4.1: Comparación entre los modelos empíricos de hinchamiento por productos sólidos de fisión propuestos por MATPRO, FRAPCON y Olander.

trabajo de Spino et al. [16], se considera un rango que va entre 0.15 y 0.45 % cada 10 MWd/kgU. Este rango tiene en cuenta las incertidumbres asociadas a la migración de especies y sus volúmenes parciales, así como también las variaciones en la estequiometría del combustible. Por otra parte, para el modelo del FRAPCON se consideró una banda de incertidumbre de $\pm 20\%$ [15]. Como se puede observar, el modelo del MATPRO y el modelo del FRAPCON con su incertidumbre asociada se encuentra por encima del rango establecido por Olander y Spino. Esto se debe a que el ajuste de estos modelos fue realizado en base a datos experimentales de cambios dimensionales en pastillas a quemados elevados, en las cuales también se incluye el efecto de la densificación, el hinchamiento por productos gaseosos y la liberación de gases de fisión. De hecho, a partir de la versión FRAPCON-3 se elimina el código correspondiente al hinchamiento por productos gaseosos del modelo ya que se tendía a sobre-estimar el hinchamiento obtenido en los experimentos. Por estas razones, y considerando que en este trabajo se implementó un modelo detallado de la evolución de la población de burbujas intra- e intergranulares, se utiliza el modelo de hinchamiento por productos sólidos de Olander para realizar las simulaciones.

Referencias

- [1] S. C. Middleburgh, R. W. Grimes, K. H. Desai, P. R. Blair, L. Hallstadius, K. Backman y P. Van Uffelen. "Swelling due to fission products and additives dissolved within the uranium dioxide lattice". *Journal of Nuclear Materials* 427 (2012), págs. 359-363.
- [2] F. Anselin. *The role of fission products in the swelling of irradiated UO_2 and $(U,Pu)O_2$ fuel*. Inf. téc. GEAP-5583. California, United States: U. S. Atomic Energy Commission, 1968.
- [3] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. Technical Information Center, Office of Public Affairs, Energy Research and Development Administration, 1976. Cap. 13.
- [4] J. W. Harrison y L. M. Davies. "The variation of solid fission product and gas swelling in uranium compounds with thermal neutron dose rate". *Journal of Nuclear Materials* 27 (1968), págs. 239-240.
- [5] T. C. Rowland, M. O. Marlowe y R. B. Elkins. *Fission Product Swelling BWR Fuels*. Inf. téc. NEDP-20702. 1974.
- [6] B. R. T. Frost. "Studies of irradiation effects in ceramic fuel at Harwell". *Journal of the American Ceramic Society* 27 (1969).
- [7] A. D. Whapham y B. E. Sheldon. *Electron Microscope Observation of the Fission Gas Bubble Distribution in UO_2* . Inf. téc. AERE-R-4970. 1966.
- [8] *SCDAP/RELAP5/MOD3.1 Code Manual Volume IV: MATPRO. A Library of Materials Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis*. Idaho National Engineering Laboratory, Office of Nuclear Regulatory Research, U. S. Nuclear Regulatory Commission. 1993.
- [9] D. D. Lanning, C. E. Beyer y C. L. Painter. *FRAPCON-3: Modifications to Fuel Rod Material Properties and Performance Models for High-Burnup Application*. Inf. téc. NUREG/CR-6534, Volume 1, PNNL-11513. Washington, United States: U. S. Nuclear Regulatory Commission, 1997.
- [10] C. G. Dideon. *Fuel Performance Under Extended Burn up for the B&W 15x15 Design*. Inf. téc. DOE/ET/34212. Virginia, United States: Babcock y Wilcox Company, 1983.
- [11] L. W. Newman. *The Hot Cell Examination of Oconee 1 Fuel Rods After Five Cycles of Irradiation*. Inf. téc. DOE/ET/34212-50. Virginia, United States: Babcock y Wilcox Company, 1986.
- [12] G. P. Smith, R. C. Pirek, H. R. Freeburn y D. Schrire. *The Evaluation and Demonstration of Methods for Improved Nuclear Fuel Utilization*. Inf. téc. DOE/ET/34013-15. Connecticut, United States: Combustion Engineering Company, 1994.
- [13] A. M. Garde. *Hot Cell Examination of Extended Burnup Fuel from Fort Calhoun*. Inf. téc. DOE ET 34030-11, CEND-427. Connecticut, United States: Combustion Engineering Company, 1986.
- [14] W. G. Luscher y K. J. Geelhood. *Material Property Correlations: Comparisons between FRAPCON-3.4, FRAPTRAN 1.4, and MATPRO*. Inf. téc. PNNL-19418, Vol. 1, Rev. 2. Washington, United States: U. S. Nuclear Regulatory Commission, 2015.
- [15] K. J. Geelhood, W. G. Luscher, P. A. Raynaud y P. I. E. *FRAPCON-4.0: A Computer Code for the Calculation of Steady-State, Thermal-Mechanical Behavior of Oxide Fuel Rods for High Burnup*. Inf. téc. NUREG/CR-7024, PNNL-19417. Washington, United States: U. S. Nuclear Regulatory Commission, 2015.
- [16] J. Spino, J. Rest, W. Goll y C. T. Walker. "Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO_2 fuels at high burn-up". *Journal of Nuclear Materials* 346 (2005), págs. 131-144.

5. Crecimiento de grano

En el proceso de fabricación de las pastillas, durante el sinterizado, los granos alcanzan un tamaño típico de alrededor de 10 micrones. Luego, durante el período de operación dentro del reactor, el grano experimenta un crecimiento significativo, sobre todo en las regiones donde la pastilla alcanza mayores temperaturas (típicamente, en el centro de la misma). De esta manera, el tamaño de grano promedio puede alcanzar valores que son varias veces el valor inicial con el que fue fabricado.

El crecimiento de grano posee un rol importante en el hinchamiento y la liberación de gases de fisión, así como también en otros aspectos del comportamiento de las pastillas combustibles, entre los que se puede citar la conductividad térmica y su influencia en los fenómenos de fractura [1]. Por estas razones, se consideró pertinente llevar a cabo una revisión de los modelos de crecimiento de grano actualmente implementados en DIONISIO, así como también realizar una búsqueda bibliográfica para analizar el estado del arte en relación a esta temática. De esta manera, se busca implementar nuevos modelos al código en los cuales se contemplen distintos tipos de combustible y condiciones de temperatura e irradiación.

En lo que respecta a este trabajo, el crecimiento de grano va a tener influencia en tres factores fundamentales:

- a) En primer lugar, aumentar la distancia que los átomos de gas deben difundir, contrarrestando el fenómeno de transporte de átomos de gas hacia los bordes de grano.
- b) En segundo lugar, reducir la relación superficie/volumen, haciendo que disminuya la capacidad de almacenar átomos de gas en los bordes de grano (por lo tanto, disminuyendo el hinchamiento).
- c) Por último, el movimiento de los bordes de grano genera un fenómeno de “barrido” o arrastre de átomos de gas (*grain boundary sweeping*). Este barrido proporciona un mecanismo adicional mediante el cual es posible la recolección de átomos de gas disueltos que se encuentran en el seno del grano, y que pasan a formar parte del inventario de gas intergranular.

Por otra parte, en este trabajo se tendrá en cuenta únicamente el fenómeno de crecimiento de grano normal o equiaxial. El crecimiento de grano columnar, asociado a la migración de burbujas por medio de procesos de evaporación y condensación, no será considerado en esta instancia debido a que es un fenómeno típico de condiciones de reactores de neutrones rápidos, donde se alcanzan temperaturas mayores a los 2000 K [2].

5.1. Modelos de crecimiento de grano

Durante el crecimiento de grano, los granos de mayor tamaño crecen a expensas de los granos más pequeños. A escala microscópica, el proceso involucra la difusión de átomos desde el lado convexo del borde de grano hacia el lado cóncavo; si el borde fuera perfectamente plano no habría movimiento ya que los átomos se moverían de un lado hacia otro a la misma tasa. El movimiento de átomos del lado convexo al lado cóncavo se explica debido a que, en promedio, los átomos del lado cóncavo se encuentran rodeados de una mayor cantidad de átomos vecinos a comparación del lado convexo. Esto hace que el borde de grano se mueva en una dirección opuesta al flujo neto de átomos, es decir, hacia el centro de curvatura del grano que se encuentra en el lado convexo. Esto se refleja en la Figura 5.1.

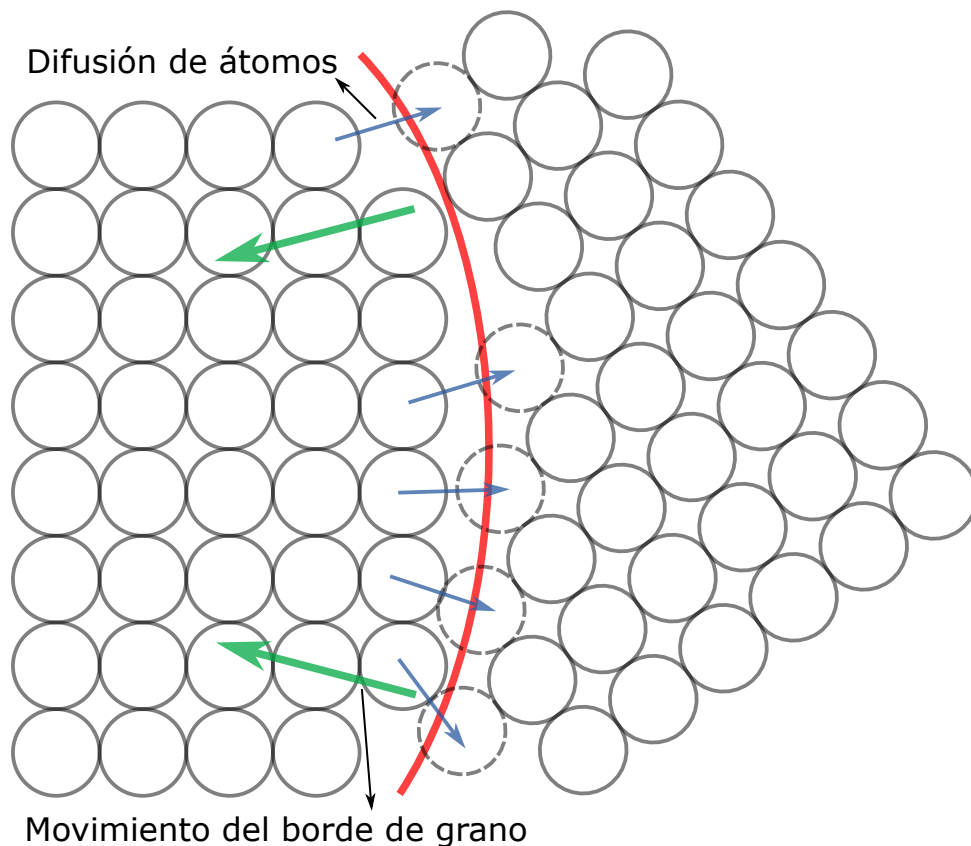


Figura 5.1: Crecimiento de granos grandes con superficies cóncavas a expensas de granos pequeños con superficies predominantemente convexas. Adaptado de Callister y Rethwisch [3].

A una escala macroscópica, la fuerza impulsora para el crecimiento de grano es la reducción de la energía asociada con los bordes de grano: a medida que los granos incrementan su tamaño, el área total de bordes de grano disminuye, haciendo que disminuya la energía total del sólido. Si la energía por unidad de área de borde de grano está dada por γ_{gb} , un borde de grano curvo experimenta una fuerza hacia el centro de curvatura igual a $2\gamma_{gb}/R_c$, siendo R_c el radio de curvatura. Como el radio de curvatura es proporcional al

tamaño de grano a , se puede expresar la fuerza impulsora F_{gb} como [4]:

$$F_{gb} \propto \frac{\gamma_{gb}}{a} \quad (5.1)$$

Esta fuerza, que actúa sobre un borde de grano curvo, genera un movimiento del borde de grano en la misma dirección que la fuerza. La tasa de crecimiento de borde de grano va a estar dada por:

$$\frac{da}{dt} = M_{gb}F_{gb} \quad (5.2)$$

donde la constante de proporcionalidad M_{gb} es la movilidad del borde de grano, una propiedad intrínseca del material que refleja la máxima velocidad a la cual los átomos pueden difundir de un lado hacia el otro del borde de grano. Combinando las Ecuaciones (5.1) y (5.2) e integrando con los límites $a = a_0$ (tamaño de grano inicial) para $t = 0$, se tiene:

$$a^2 - a_0^2 = kt \quad (5.3)$$

donde se define $k = 2M_{gb}\gamma_{gb}$ como la constante de crecimiento de grano. Ahora bien, como k es proporcional a la movilidad de los bordes de grano, y este es un proceso térmicamente activado, se puede definir su dependencia con la temperatura mediante una función del tipo Arrhenius:

$$k = k_0 \exp\left(-\frac{Q}{k_B T}\right) \quad (5.4)$$

siendo k_0 una constante y Q la energía de activación para el crecimiento de grano.

Si bien la expresión (5.3) resulta ser válida para metales y aleaciones de alta pureza, se encuentra que no describe correctamente el crecimiento de grano que se observa experimentalmente en materiales policristalinos, tanto metales como cerámicos [1]. Esto se puede adjudicar a la presencia de otras fuerzas impulsoras además de la curvatura (como las que pueden surgir a partir de las tensiones residuales) o por la presencia de fuerzas resistivas (como las que pueden surgir en materiales con porosidad o partículas en segunda fase), que el modelo no tiene en cuenta. Por esta razón se suele modificar la Ecuación (5.3) de la siguiente manera:

$$a^n - a_0^n = kt \quad (5.5)$$

donde el exponente n y la constante k son determinados mediante ajustes a los datos experimentales. En general, el valor de n varía entre 2 y 4. Para el caso específico del UO_2 , varios autores utilizaron la Ecuación (5.5) para ajustar los datos experimentales de crecimiento de grano. A modo de ejemplo, se puede citar a MacEwan et al. [5], quienes encuentran $n = 2.5$ y $Q = 460$ kJ/mol. Por otra parte, Hastings et al. [6] encuentran $n = 2.5$ y $Q = 320$ kJ/mol. Por último, Singh [7] encuentra $n = 3$ y $Q = 502$ kJ/mol.

En 1973, Ainscough et al. [8] presentan un modelo alternativo que tiene en cuenta el crecimiento de grano en materiales que presenten fuerzas resistivas significativas. Para esto, utilizan la ecuación que se obtiene de combinar las Ecuaciones (5.1) y (5.2), a la

cual se le agrega un término constante k' que representa las fuerzas que surgen a partir de la interacción entre el borde de grano y las inclusiones y/o poros (efecto Zener, o *Zener pinning*):

$$\frac{da}{dt} = \frac{k}{a} - k' \quad (5.6)$$

Es importante destacar que este modelo contempla la presencia de un tamaño de grano límite a_m , es decir, el crecimiento de grano cesará una vez alcanzado este tamaño máximo. Esta condición se da cuando $da/dt \rightarrow 0$, con lo cual $a_m = k/k'$. La ley de crecimiento se puede escribir entonces como:

$$\frac{da}{dt} = k \left(\frac{1}{a} - \frac{1}{a_m} \right) \quad (5.7)$$

De acuerdo a Olander [4], la existencia de un tamaño de grano límite se explica a partir de la capacidad de la porosidad de frenar completamente el movimiento de los bordes de grano una vez que el tamaño alcanzado es lo suficientemente grande. El valor de a_m también resulta ser dependiente de la temperatura; un aumento de la temperatura conlleva también un aumento en la emisión de vacancias por parte de los poros, haciendo que disminuyan su tamaño (proceso de sinterizado), aumentando entonces el valor del tamaño de grano límite. El ajuste a los datos experimentales realizados por Ainscough et al. permite obtener la constante de crecimiento de grano k ($\mu\text{m}^2/\text{h}$) y el tamaño de grano límite a_m (μm) como:

$$k = 5.24 \times 10^7 \exp \left(\frac{-2.67 \times 10^5}{RT} \right) \quad (5.8)$$

$$a_m = 2.23 \times 10^3 \exp \left(\frac{-7620}{T} \right) \quad (5.9)$$

donde $R = 8.314 \text{ J/K}$ es la constante de los gases y T es la temperatura (K). Por otra parte, el modelo de Ainscough fue el primero en tener en cuenta el efecto de la irradiación sobre el fenómeno de crecimiento de grano. La irradiación afecta al crecimiento de grano de dos maneras: por un lado, la generación de vacancias (debido a las cascadas de colisiones) promueve el crecimiento, mientras que por otro lado la generación de productos de fisión inhibe el crecimiento. De acuerdo a Brainbridge et al. [9], el resultado neto de ambos efectos es el de retrasar el crecimiento, indicando que el mecanismo dominante es el efecto Zener provocado por los productos de fisión. El modelo de Ainscough et al. también tiene en cuenta esta suposición. La Ecuación (5.7) se modifica empíricamente de la siguiente manera para tener en cuenta la irradiación:

$$\frac{da}{dt} = k \left(\frac{1}{a} - \frac{f(BU)}{a_m} \right) \quad (5.10)$$

donde:

$$f(BU) = 1 + 0.002BU \quad (5.11)$$

siendo BU el quemado luego de un tiempo t (MWd/tU). Esta ecuación da cuenta de

que el tamaño de grano límite será menor bajo condiciones de irradiación. Esto se puede observar en la Figura 5.2, donde se grafica la evolución del tamaño de grano para distintas tasas de fisiones \dot{F} , considerando un tamaño de grano inicial de $10\ \mu\text{m}$ y una temperatura constante de 1400°C .

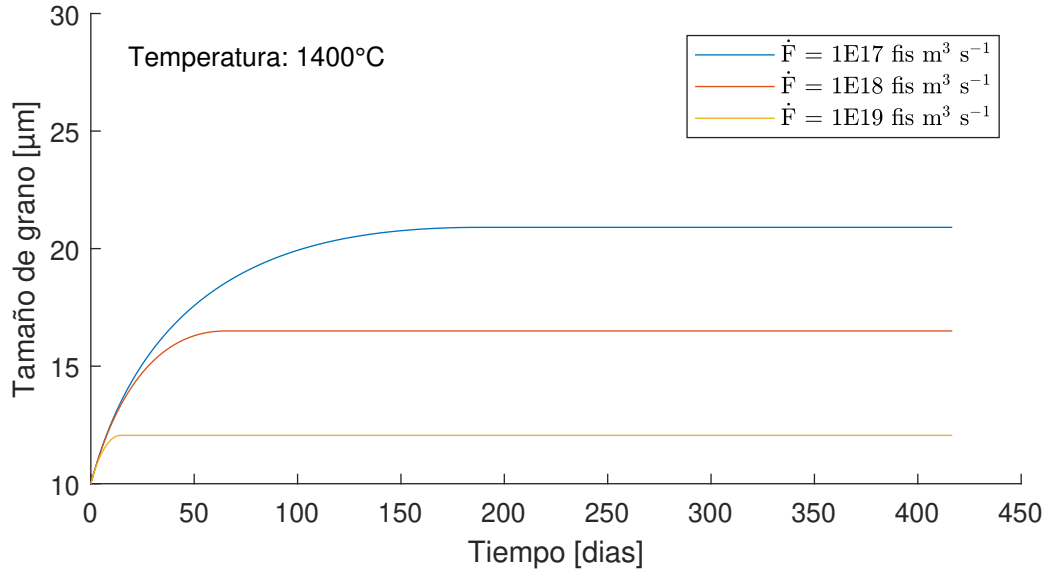


Figura 5.2: Efecto de la irradiación en el crecimiento de grano.

Por un lado, el gráfico indica que, mientras mayor sea la tasa de fisiones, menor será el tamaño de grano límite alcanzado. Por otra parte, también se puede observar que cambia el tiempo necesario para alcanzar ese tamaño de grano límite. Esto también va a tener una dependencia con la temperatura; si se deja fija una tasa de fisiones de 1×10^{19} fisiones/ m^3s , y se grafica la evolución del tamaño de grano para distintas temperaturas (Figura 5.3, izquierda), se puede notar que el tiempo necesario para alcanzar el tamaño de grano límite varía con la temperatura. Si se grafica este tiempo en función de la temperatura (Figura 5.3, derecha) se puede notar que el tiempo máximo se encuentra alrededor de los 1400°C . Por debajo de los 1100°C aproximadamente, el crecimiento de grano no es apreciable.

Es importante destacar que el modelo de Ainscough et al. es utilizado en la mayoría de los códigos de combustible actuales. En 1985, Ito et al. [10] notan que la Ecuación (5.11) no es válida para transitorios de potencia, y sólo se aplica a condiciones de operación a potencia constante. Por esta razón proponen reemplazar el término $f(BU)$ por:

$$f(N) = 1 + \eta N/N_s \quad (5.12)$$

donde N es el número de átomos de gas por unidad de área de borde de grano, N_s es el nivel de saturación (estimado en 2×10^{15} átomos/ cm^2), y $\eta = 0.5$ sale del ajuste con datos experimentales.

En 1999, Khoruzhii et al. [11] proponen una nueva modificación al modelo de Ainscough et al. en base al ajuste con nuevos resultados experimentales. El nuevo modelo mantiene

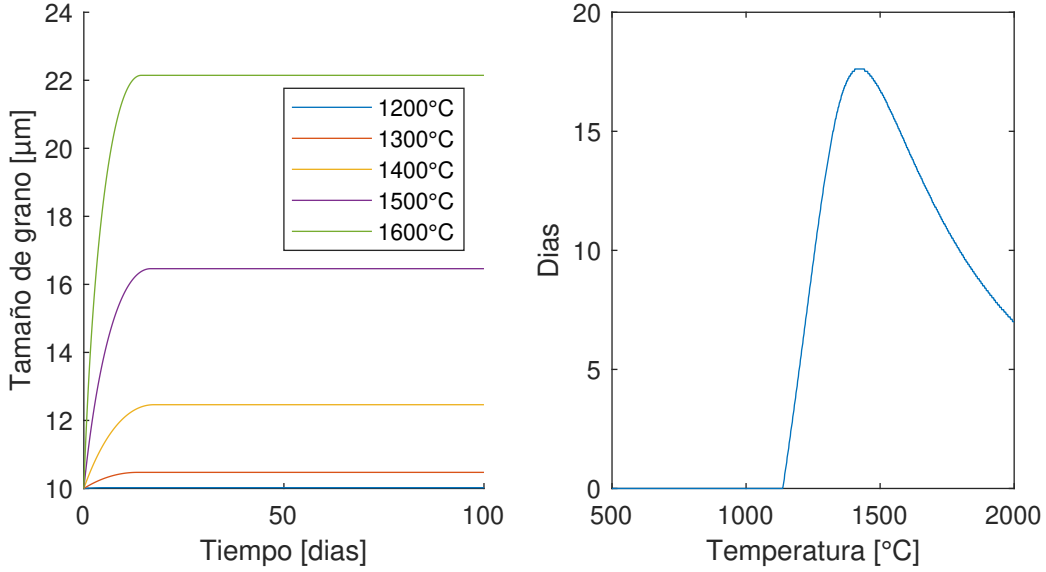


Figura 5.3: Crecimiento de grano para distintas temperaturas de acuerdo al modelo de Ainscough (izquierda) y tiempo necesario para alcanzar el tamaño de grano límite (derecha).

la formulación original de la Ecuación (5.7), y agrega un término a_{irr} para dar cuenta de la irradiación:

$$\frac{da}{dt} = k \left(\frac{1}{a} - \frac{1}{a_m} - \frac{1}{a_{irr}} \right) \quad (5.13)$$

donde:

$$a_{irr} = \left(\frac{\dot{F}_0 \cdot T_0}{\dot{F} \cdot T} \right) A \exp \left(-\frac{E}{T} \right) \quad (5.14)$$

siendo $\dot{F}_0 = 50\text{MW/tU}$ y $T_0 = 1400\text{ K}$ valores característicos de tasa de fisiones y temperatura, y $A = 326.5\ \mu\text{m}$ y $E = 5620\text{ K}$ parámetros que salen del ajuste a partir de datos experimentales.

Por último, en la Figura 5.4 se muestran, a modo de ejemplo, todos los modelos implementados para una temperatura de 1400°C y un tamaño de grano inicial de $10\ \mu\text{m}$. Para que la comparación sea válida, no se consideró la irradiación en los modelos que permiten tener en cuenta su modelado. Por esta razón, los modelos de Ito et al. y Khoruzhii et al. no son presentados en el gráfico, ya que resultan ser iguales al modelo de Ainscough et al., y sólo difieren en cómo consideran el fenómeno de irradiación. Este gráfico permite vislumbrar las distintas leyes de crecimiento, a partir de las cuales se obtienen tamaños de grano finales que van entre 11 y $35\ \mu\text{m}$, aproximadamente. Sin embargo, los modelos de Singh y MacEwan et al. presentan un comportamiento significativamente diferente del resto, dando un crecimiento de grano mucho menor. Esto se puede explicar a partir del rango de temperaturas a partir del cual realizaron los ajustes de los datos experimentales, que contemplan temperaturas mayores a los 2000°C (ver Tabla 5.1), mientras que el gráfico muestra el caso de una temperatura de 1400°C . El resto de los modelos contempla tamaños de grano finales de entre 23 y $35\ \mu\text{m}$, lo cual resulta ser bastante consistente si

se tiene en cuenta que la banda de incertidumbre que proponen Pastore et al. [12] es de $\approx \pm 0.6$ (es decir, los límites inferior y superior se determinan multiplicando el tamaño de grano calculado por factores de escala de 0.4 y 1.6, respectivamente).

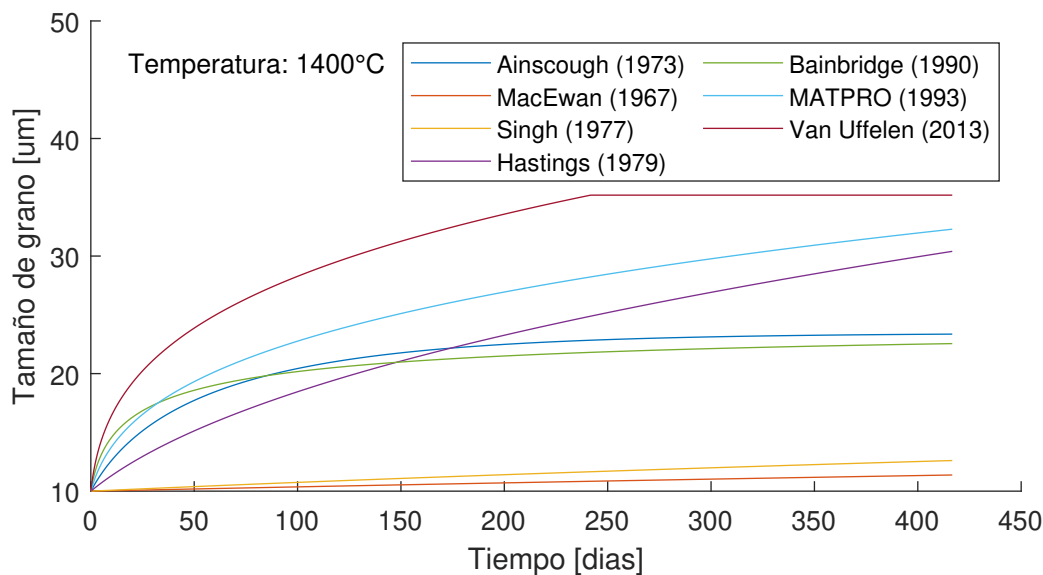


Figura 5.4: Comparación de los distintos modelos de crecimiento de grano en condiciones sin irradiación para una temperatura de 1400 °C.

A modo de resumen, en la Tabla 5.1 se muestran las características generales de todos los modelos de crecimiento de grano implementados. En la tabla se indican las ecuaciones utilizadas, el rango de temperaturas en el cual se ajustaron los datos experimentales, el tipo de combustible y si el modelo tiene en cuenta o no el efecto de la irradiación.

Tabla 5.1: Características generales de los modelos de crecimiento de grano implementados.

Ref.	Autor	Año	Forma funcional	Rango de temperaturas	Tipo de combustible	Considera irradiación
[8]	Ainscough et al.	1973	$\frac{da}{dt} = k \left(\frac{1}{a} - \frac{f(BU)}{a_m} \right)^2$	1300–1500°C	UO ₂	Sí
[9]	Bainbridge et al.	1990	$\frac{da}{dt} = k \left(\frac{1}{a} - \frac{1}{a_m} \right)^2$	1200–1800°C	MOX	No
[7]	Singh	1977	$a^3 - a_0^3 = kt$	1800–2100°C	UO ₂	No
[6]	Hastings et al.	1979	$a^{2.5} - a_0^{2.5} = kt$	1597–1797°C	UO ₂	No
[11]	Khoruzhii et al.	1999	$\frac{da}{dt} = k \left(\frac{1}{a} - \frac{1}{a_m} - \frac{1}{a_{ir}} \right)$	1027–1827°C	UO ₂	Sí
[13]	MATPRO	1993	$a^4 - a_0^4 = \frac{kt}{f(BU)T}$	-	UO ₂ , MOX	Sí
[14]	Van Uffelen et al.	2013	$\frac{da}{dt} = \frac{k}{4a^3}$	1350–1750°C	MOX	No
[5]	MacEwan et al.	1967	$a^3 - a_0^3 = kt$	1555–2440°C	UO ₂	No
[10]	Ito et al.	1985	$\frac{da}{dt} = k \left(\frac{1}{a} - \frac{f(N)}{a_m} \right)$	1300–1500°C	UO ₂	Sí

En las Figuras 5.5 y 5.6 se muestra la influencia del tamaño de grano en la liberación de gases de fisión y el hinchamiento volumétrico total (considerando tanto el hinchamiento intragranular, intergranular, y por productos sólidos de fisión), respectivamente. Las simulaciones que se muestran en estos gráficos fueron realizadas para una temperatura de 1500 °C, considerando una historia de potencia constante de 10000 horas a una potencia lineal de 30 kW/m. Por otra parte, en los gráficos también se contrastan las condiciones

con y sin la consideración del fenómeno de crecimiento de grano.

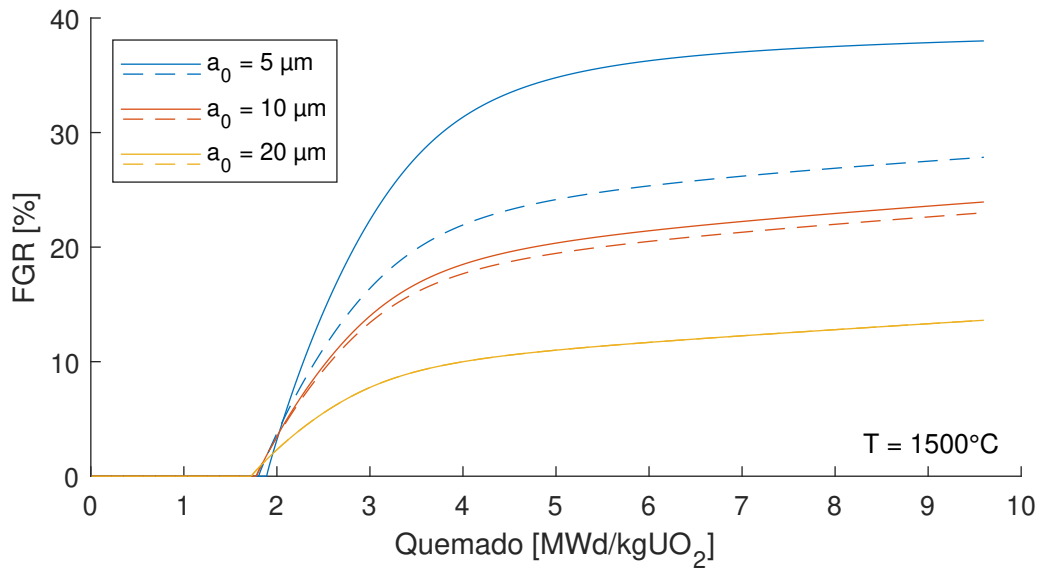


Figura 5.5: Influencia del tamaño de grano en la liberación de gases de fisión para una temperatura de 1500 °C. Las líneas llenas no consideran el fenómeno de crecimiento de grano, y las líneas punteadas consideran el modelo de crecimiento de grano de Ainscough et al. [8].

En primer lugar, se puede notar que, mientras menor sea el tamaño de grano, mayor es tanto el hinchamiento como la liberación de gases. Este comportamiento, que fue verificado experimentalmente por Turnbull [15], se debe principalmente a la menor distancia que tienen los átomos de gas para difundir hacia los bordes de grano, así como también a la menor relación superficie/volumen, lo cual disminuye la cantidad de átomos en los bordes de grano. Por otro lado, también se puede notar la influencia del modelo de crecimiento de grano. Por las mismas razones citadas previamente, al aumentar el tamaño de grano con

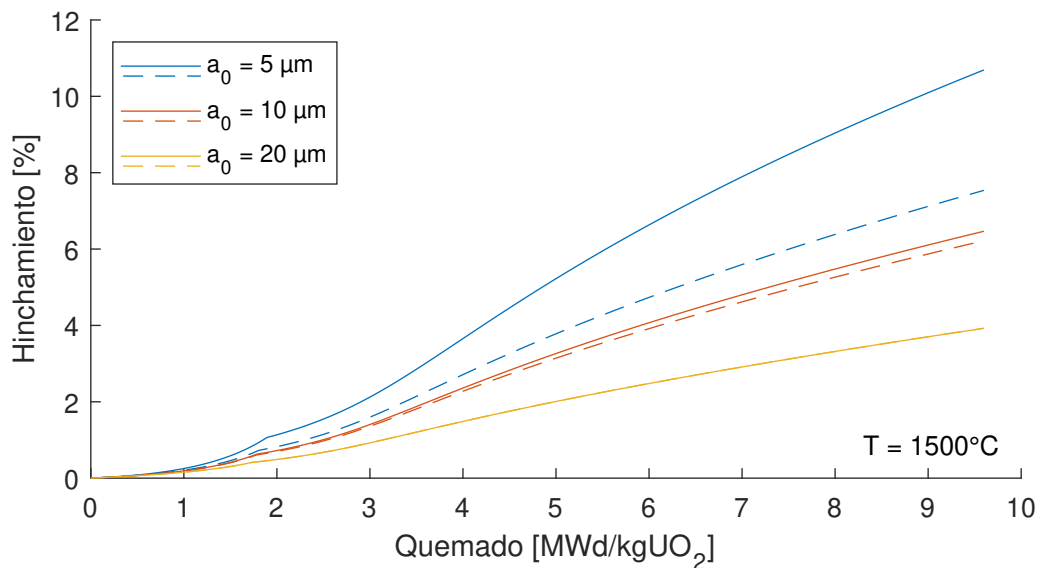


Figura 5.6: Influencia del tamaño de grano en el hinchamiento volumétrico para una temperatura de 1500 °C. Las líneas llenas no consideran el fenómeno de crecimiento de grano, y las líneas punteadas consideran el modelo de crecimiento de grano de Ainscough et al. [8].

el quemado, disminuye tanto el hinchamiento como la liberación de gases. La evolución de ambos parámetros a medida que avanza el quemado tiende a ser similar que en el caso de tamaño de grano constante, debido a que se alcanza el tamaño de grano límite y cesa el movimiento de los bordes de grano. Por último, también se puede notar que la influencia del crecimiento también depende del tamaño de grano inicial; para tamaños de grano pequeños, la influencia resulta ser mayor (por ejemplo, para un radio de grano inicial de $5\ \mu\text{m}$ se tiene una diferencia de 10 % en la liberación de gases y de 3 % en el hinchamiento, aproximadamente, con respecto al caso que no considera el crecimiento de grano). A medida que aumenta el tamaño de grano, se tiene menor crecimiento, con lo cual la influencia va disminuyendo. Como se puede notar, para estas condiciones de temperatura y potencia lineal, un grano con un radio de $20\ \mu\text{m}$ no crece significativamente, con lo cual el hinchamiento y la liberación no cambian su comportamiento respecto al modelo que no considera el crecimiento de grano.

5.2. Resultados

Con el objetivo de validar los modelos de crecimiento de grano presentados en las secciones anteriores, se utilizará la base de datos provista por Brite et al. en el marco del EEI/EPRI Fuel Densification Project [16]. Este trabajo, que fue realizado para investigar las principales causas del proceso de densificación en pastillas combustibles de UO_2 , cuenta con mediciones de tamaño de grano inicial y final para distintas condiciones de tiempo y temperatura, en experimentos realizados con y sin irradiación. En la Sección 5.2.1 se realizará una breve descripción de los datos experimentales. Luego, en las Secciones 5.2.2 y 5.2.3 se contrastan los resultados obtenidos mediante las simulaciones con los resultados experimentales para los casos con y sin irradiación, respectivamente.

5.2.1. Datos experimentales

El EEI/EPRI Fuel Densification Project fue un trabajo realizado por Battelle (Pacific Northwest Laboratories) a pedido del Edison Electric Institute / Electric Power Research Institute Inc y once organizaciones vinculadas a la industria nuclear. Su objetivo principal consistía en la investigación del proceso de densificación dentro del reactor para combustibles de distintas características y condiciones de irradiación; sin embargo, también se realizaron experimentos sobre el fenómeno de crecimiento de grano para estudiar el efecto de la microestructura en la densificación.

Con respecto a los experimentos realizados con irradiación, se evaluaron un total de 20 tipos de combustible. 9 de ellos fueron fabricados especialmente para el proyecto (denominados con números del 1 al 9) y 11 fueron suministrados por otras organizaciones (denominadas con letras). Para evaluar el efecto de la microestructura del combustible, se utilizaron tamaños de grano iniciales de entre 3 y 29 μm . Se realizó un estudio cualitativo detallado de las características microestructurales antes y después de la irradiación mediante técnicas de microscopía óptica y electrónica, con lo cual los valores de tamaño de grano reportados son reproducibles en $\pm 1 \mu\text{m}$. Las cápsulas fueron irradiadas a una potencia lineal promedio de entre 262 y 312 W/cm , con tiempos de irradiación de entre 446 y 1629 horas. Es importante destacar que en ningún experimento se sobrepasó los 1400°C en la línea central del combustible; esto puede considerarse una limitación para el proceso de validación de las simulaciones ya que no se va a tener un crecimiento de grano significativo para estos valores de temperatura.

Por otra parte, en el proyecto se realizaron ensayos de resinterizado isotérmico en combustibles que no fueron irradiados. En este caso, se examinan 5 tipos de combustible, con tamaños de grano iniciales de entre 3 y 22 μm . Los ensayos fueron realizados en períodos de entre 14 y 1500 horas, a temperaturas entre 1300 y 1700°C . El efecto de las mayores temperaturas y la ausencia de irradiación conlleva mayores crecimientos, con tamaños de grano finales que van entre 6 y 35 μm .

5.2.2. Resultados con irradiación

En la Figura 5.7 se muestra la comparación entre los tamaños de grano medidos experimentalmente y simulados mediante cuatro modelos que tienen en cuenta el efecto de la irradiación. Es importante destacar que, si bien el modelo de Bainbridge no tiene a la irradiación como un parámetro del modelo, el ajuste que se hizo para obtener la constante de velocidad y el tamaño de grano límite de este modelo se hizo a partir de datos de combustibles irradiados. Por esta razón se lo considera dentro de este grupo. Por otra parte, el modelo de Ito et al. no fue considerado en esta primera instancia de validación ya que necesita acoplarse a un modelo que considere la evolución de las burbujas intergranulares.

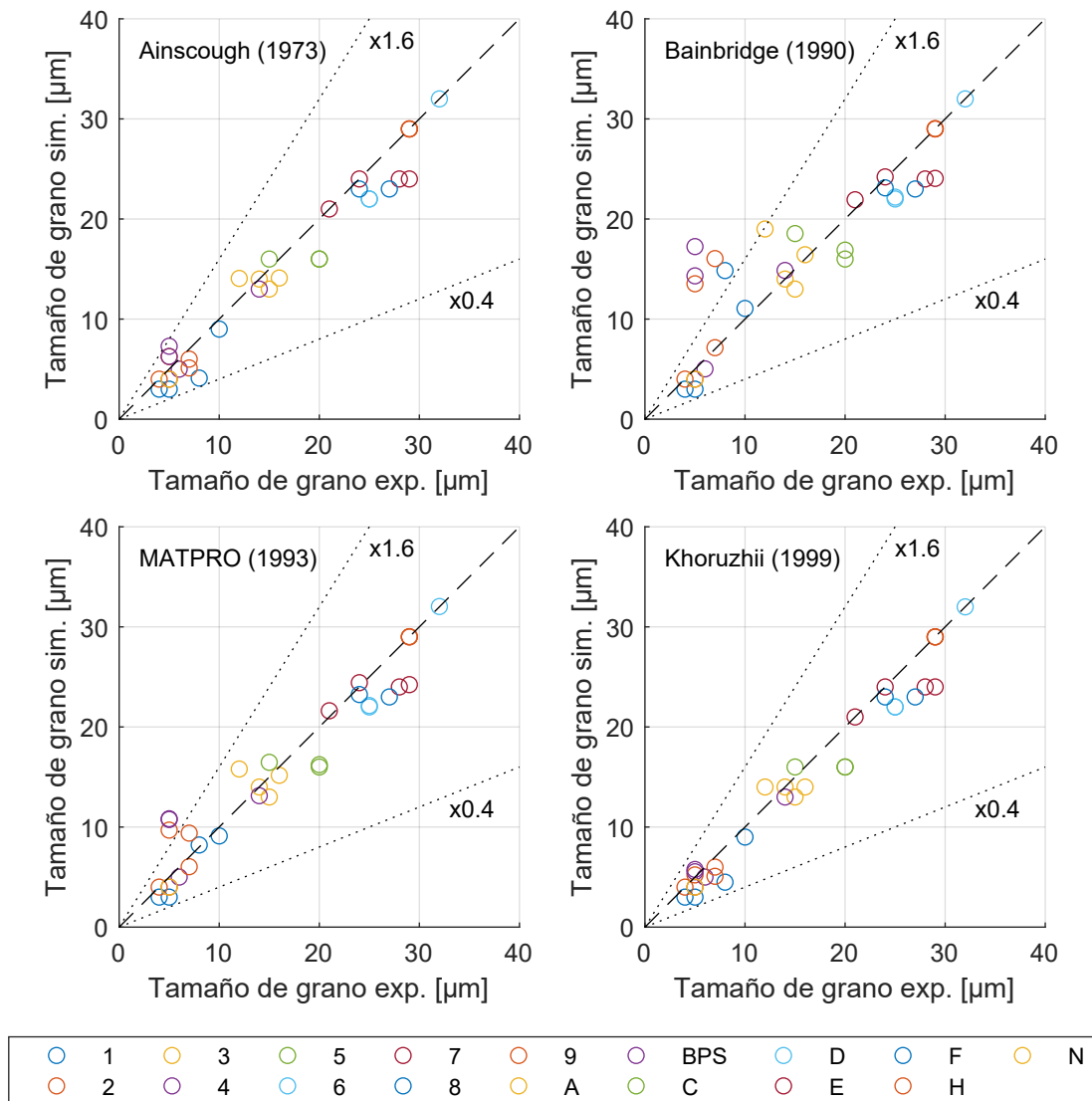


Figura 5.7: Datos experimentales vs. resultados simulados para el tamaño de grano final en experimentos con irradiación.

Como se puede observar, todos los modelos parecen dar una buena descripción del crecimiento de grano bajo estas condiciones de irradiación y temperatura. Sin embargo, se puede notar que el modelo de Bainbridge presenta algunas discrepancias, con crecimientos de grano calculados mayores a los obtenidos experimentalmente para tamaños de grano

menores a los 20 μm . Para determinar cuantitativamente la bondad de los ajustes y, de esta manera, validar la selección del modelo que mejor se ajusta a los datos experimentales, se plantea utilizar el coeficiente de correlación de concordancia de Lin [17, 18].

El coeficiente de correlación de concordancia (CCC) es un índice que permite evaluar el acuerdo que existe entre dos conjuntos de datos que representan a una misma variable (en este caso, el tamaño de grano). Esto se realiza a partir de la medición de la variación que existe entre los datos y la recta de 45° que pasa por el origen (línea de concordancia, denominada 45°₀). Matemáticamente, se define el CCC como:

$$CCC = \frac{2\sigma_{12}}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2 + (\mu_1 - \mu_2)^2} \quad (5.15)$$

donde μ_1 y μ_2 representan la media de los respectivos conjuntos de datos, σ_1 y σ_2 la varianza, y σ_{12} la covarianza.

El CCC es un número que se encuentra en el rango entre -1 y 1. Un CCC de 1 indica que todos los pares de datos se encuentran exactamente en la línea de concordancia, es decir, que los valores simulados resultan ser igual a los experimentales. El CCC contiene una medida de la precisión y la exactitud, y se puede escribir como:

$$CCC = \rho C_b \quad (5.16)$$

donde ρ es el coeficiente de correlación de Pearson, que mide qué tanto se desvía cada observación de la recta de mejor ajuste (es decir, la precisión) y C_b es un factor de corrección (*bias*) que mide qué tanto se desvía la recta de mejor ajuste con respecto a la recta de concordancia 45°₀ (es decir, la exactitud). El término C_b toma valores del intervalo $0 < C_b \leq 1$ e indica desviaciones tanto en la pendiente como en la ordenada al origen.

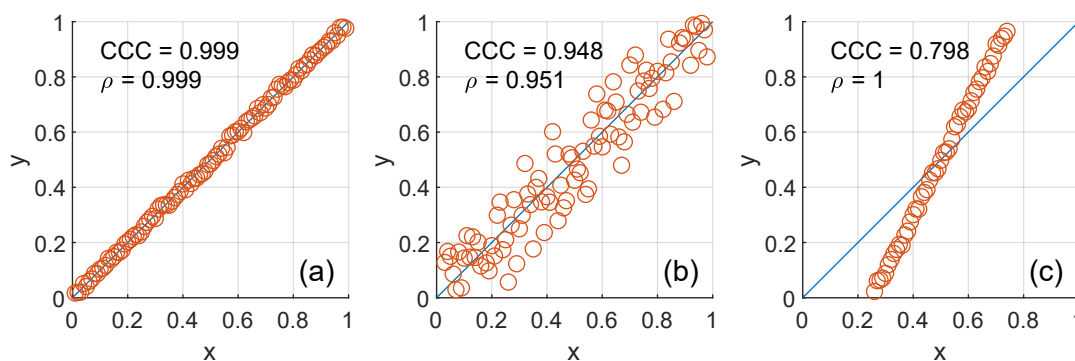


Figura 5.8: Coeficiente de concordancia de Lin (CCC) y su relación con el coeficiente de correlación de Pearson (ρ).

En la Figura 5.8 se ejemplifica gráficamente la relación entre el coeficiente de correlación de Lin y de Pearson. En el caso (a), se tiene que el conjunto de datos se ajusta muy bien a la línea de concordancia, con lo cual el CCC y ρ son muy cercanos a 1. En el caso (b), los datos se siguen ajustando a la misma recta, pero presentando una mayor desviación,

haciendo que disminuya ρ , con lo cual el CCC también disminuye. Por último, en el caso (c), los datos se ajustan perfectamente a una recta (con lo cual $\rho = 1$), pero no es la recta 45°_0 , sino que presenta otra pendiente y ordenada al origen. Esto hace que el factor de corrección C_b sea significativamente menor a 1, dando como resultado un menor valor en el CCC.

En la Tabla 5.2 se muestran los resultados del análisis de concordancia, indicando el coeficiente de correlación de concordancia, el intervalo de confianza del 95 %, el coeficiente de correlación de Pearson ρ y el factor de corrección C_b .

Tabla 5.2: Coeficientes de correlación de concordancia de Lin para los modelos de crecimiento de grano que consideran el fenómeno de irradiación.

Modelo	CCC	Intervalo de confianza	ρ	C_b
Ainscough et al.	0.9720	[0.9459, 0.9856]	0.9809	0.9909
Bainbridge et al.	0.8808	[0.7802, 0.9370]	0.8939	0.9854
MATPRO	0.9572	[0.9187, 0.9777]	0.9628	0.9942
Khoruzhii et al.	0.9740	[0.9500, 0.9866]	0.9838	0.9901

Como se puede observar, el test de concordancia indica que el mejor ajuste entre los datos experimentales y simulados se consiguen mediante los modelos de Khoruzhii et al. y Ainscough et al., con coeficientes de concordancia mayores a 0.97. Por otra parte, también se puede notar que el modelo de Bainbridge posee el menor CCC. Esto se debe a que, si bien el término de corrección C_b es cercano a 1 (indicando que la recta de mejor ajuste es aproximadamente la línea de concordancia), el coeficiente de correlación de Pearson es bastante menor, debido a los desvíos notados anteriormente para los tamaños de grano menores a los 20 μm . Esto también conduce a un intervalo de confianza más amplio para el CCC.

5.2.3. Resultados sin irradiación

En la Figura 5.9 se muestra la comparación entre los tamaños de grano medidos experimentalmente y simulados mediante seis modelos que no tienen en cuenta el efecto de la irradiación. En primera instancia, se puede notar que los resultados presentan una mayor desviación con respecto al caso de los modelos con irradiación. Para cuantificar el modelo que mejor se ajusta a los datos experimentales, se realiza nuevamente un análisis de concordancia igual al explicado en la sección previa. Los resultados se presentan en la Tabla 5.3.

Como se puede observar, el análisis de concordancia indica que el modelo que mejor se ajusta a estos datos experimentales es el modelo de Van Uffelen et al. Es importante destacar que si bien este modelo fue realizado en base a datos de combustibles MOX, sus autores indican que estos resultados también pueden ser aplicados para la simulación de combustibles de UO_2 , teniendo en cuenta la incertidumbre pertinente a las mediciones experimentales del tamaño de grano. Por otra parte, también se puede notar que los modelos

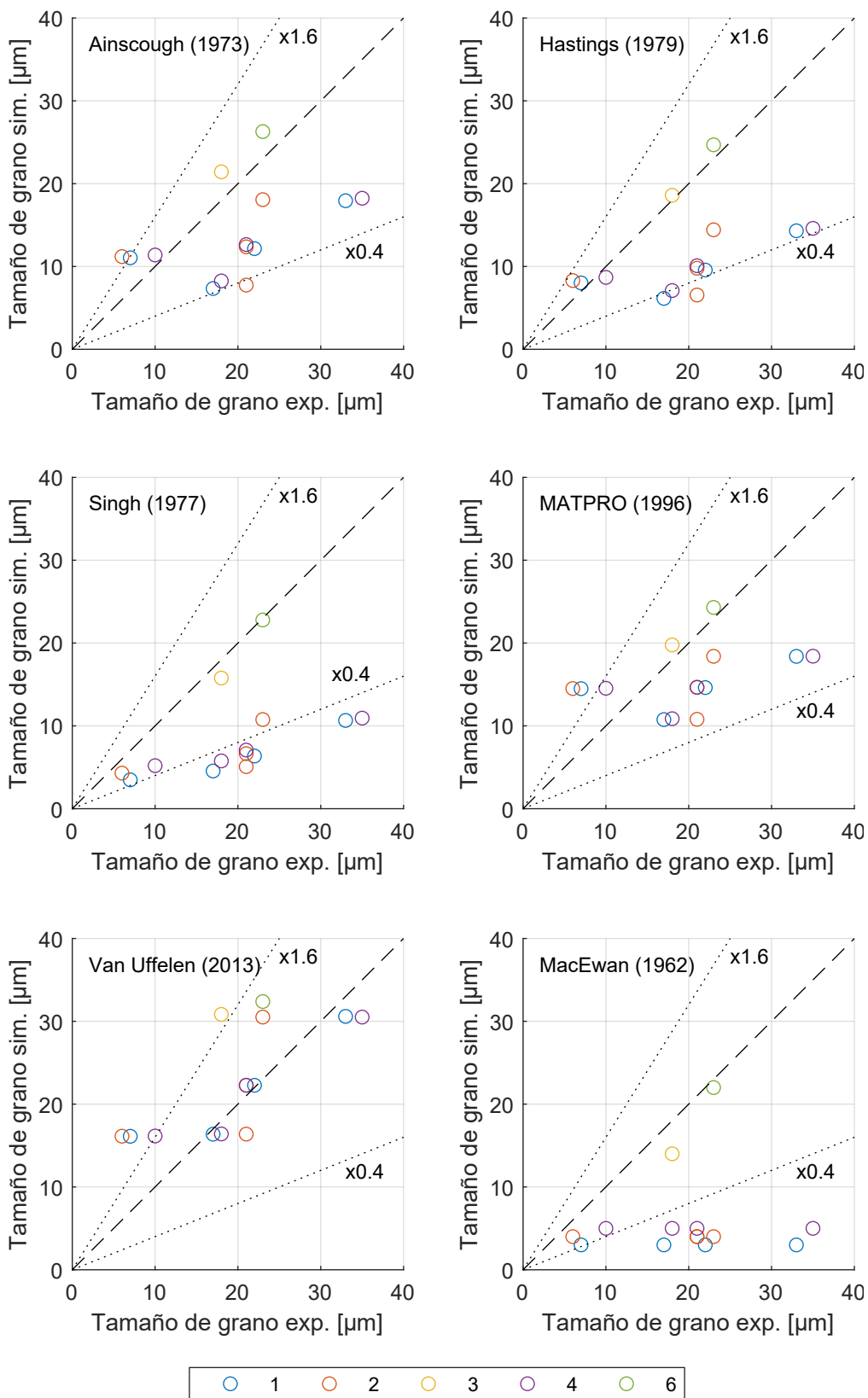


Figura 5.9: Datos experimentales vs. resultados simulados para el tamaño de grano final en experimentos sin irradiación.

Tabla 5.3: Coeficientes de correlación de concordancia de Lin para los modelos de crecimiento de grano que no consideran el fenómeno de irradiación.

Modelo	CCC	Intervalo de confianza	ρ	C_b
Ainscough et al.	0.3106	[-0.0737, 0.6146]	0.4503	0.6899
MATPRO	0.2444	[-0.1045, 0.5398]	0.3866	0.6322
Hastings et al.	0.2268	[-0.0717, 0.4880]	0.4354	0.5208
Singh	0.1755	[-0.0502, 0.3842]	0.4557	0.3852
Van Uffelen et al.	0.6408	[0.2510, 0.8518]	0.7159	0.8952
MacEwan et al.	0.0253	[-0.1438, 0.1928]	0.0843	0.2996

que peor se ajustan a los datos son los de MacEwan y Singh. Tal como se mencionó en la Sección 5, esto puede explicarse a partir del rango de temperaturas utilizado para realizar los ajustes a los datos experimentales, que resultaron ser considerablemente mayores a los contemplados en la base de datos del EEI/EPRI Fuel Densification Project.

Referencias

- [1] M. R. Tonks, P. A. Simon y J. Hirschhorn. “Mechanistic grain growth model for fresh and irradiated UO_2 nuclear fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 543 (2021), pág. 152576.
- [2] P. Van Uffelen, J. Hales, W. Li, G. Rossiter y R. Williamson. “A review of fuel performance modelling”. *Journal of Nuclear Materials* 516 (2019), págs. 373-412.
- [3] W. D. Callister y D. G. Rethwisch. *Fundamentals of Materials Science and Engineering, An Integrated Approach*. 5th Edition. Wiley, 2015.
- [4] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. Technical Information Center, Office of Public Affairs, Energy Research and Development Administration, 1976. Cap. 13.
- [5] J. R. MacEwan y J. Hayashi. “Grain growth in UO_2 , Some factors influencing equiaxed grain growth”. *Proceedings of the British Ceramic Society* 7 (1967), págs. 245-271.
- [6] I. J. Hastings, J. A. Scoberg y K. MacKenzie. “Grain growth in UO_2 : in-reactor and laboratory testing”. *Journal of Nuclear Materials* 82 (1979), págs. 435-438.
- [7] R. N. Singh. “Isothermal grain-growth kinetics in sintered UO_2 pellets”. *Journal of Nuclear Materials* 64 (1977), págs. 174-178.
- [8] J. B. Ainscough, B. W. Oldfield y J. O. Ware. “Isothermal grain growth kinetics in sintered UO_2 pellets”. *Journal of Nuclear Materials* 49 (1973), págs. 117-128.
- [9] J. E. Bainbridge, C. B. A. Forty y D. G. Martin. “The grain growth of mixed oxide fuel during irradiation”. *Journal of Nuclear Materials* 171 (1990), págs. 230-236.
- [10] K. Ito, R. Iwasaki e Y. Iwano. “Finite element model for analysis of fission gas release from UO_2 fuel”. *Journal of Nuclear Science and Technology* 22(2) (1985), págs. 129-138.
- [11] O. V. Khoruzhii, S. Y. Kourtchatov y V. V. Likhanskii. “New model of equiaxed grain growth in irradiated UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 265 (1999), págs. 112-116.
- [12] G. Pastore, L. P. Swiler, J. D. Hales, S. R. Novascone, D. M. Perez, B. W. Spencer, L. Luzzi, P. Van Uffelen y R. L. Williamson. “Uncertainty and sensitivity analysis of fission gas behavior in engineering-scale fuel modeling”. *Journal of Nuclear Materials* 456 (2015), págs. 398-408.
- [13] *SCDAP/RELAP5/MOD3.1 Code Manual Volume IV: MATPRO. A Library of Materials Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis*. Idaho National Engineering Laboratory, Office of Nuclear Regulatory Research, U. S. Nuclear Regulatory Commission. 1993.
- [14] P. Van Uffelen, P. Botazzoli, L. Luzzi, S. Bremier, A. Schubert, P. Raison, R. Eloirdi y M. A. Barker. “An experimental study of grain growth in mixed oxide samples with various microstructures and plutonium concentrations”. *Journal of Nuclear Materials* 434 (2013), págs. 287-290.
- [15] J. A. Turnbull. “The effect of grain size on the swelling and gas release properties of UO_2 during irradiation”. *Journal of Nuclear Materials* 50 (1974), págs. 62-68.
- [16] D. W. Brite, J. L. Daniel, N. C. Davis, M. D. Freshley, P. E. Hart y R. K. Marshall. *EEI/EPRI Fuel Densification Project*. Inf. téc. Research Project 131. California, United States: Electric Power Research Institute, 1975.
- [17] L. I. Lin. “A concordance correlation coefficient to evaluate reproducibility”. *Biometrics* 45(1) (1989), págs. 255-268.
- [18] L. I. Lin. “Correction: A Note on the Concordance Correlation Coefficient”. *Biometrics* 56(1) (2000), págs. 324-325.

6. Validación en barras combustibles

Como fue mencionado en la Introducción, el código DIONISIO se compone de un conjunto de modelos destinados a simular el comportamiento de combustibles nucleares bajo irradiación dentro de un reactor de potencia o de investigación, tanto en condiciones de operación normal como de accidente. En la presente sección se hace una breve descripción del funcionamiento del código DIONISIO, así como también se detalla la influencia que tiene la incorporación de los nuevos modelos de hinchamiento y liberación de gases de fisión dentro de su esquema de funcionamiento. Luego, con la nueva versión del código se han simulado condiciones de experimentos realizados en diversos laboratorios, cuyos datos están disponibles en las bibliotecas que el Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) ofrece a los grupos de investigación que participan de sus programas [1]. En particular, se analizaron la serie de experimentos CONTACT, compuesto por tres barras combustibles, y el experimento RISØ-3, compuesto por 11 barras combustibles.

6.1. Descripción general del código DIONISIO

En su versión destinada a reactores de potencia —versión utilizada para realizar todas las validaciones generales de la presente Sección—, el código es tri- o bidimensional (con simetría axial) a elección del usuario. Trabaja sobre un dominio compuesto por una pastilla y el segmento de vaina y *gap* correspondientes. Para considerar la distribución de potencia a lo largo de una barra de combustible, se puede configurar DIONISIO para dividir la barra en un cierto número de sectores axiales, a los que se asigna un valor de potencia lineal para representar dicha distribución en conjunto con las condiciones termohidráulicas necesarias. Este modo de simular se encuentra prácticamente estandarizado en la gran mayoría de códigos de combustible y responde a una dimensionalidad $X_D + 1/2$, donde $X_D = 2; 3$ y la fracción $1/2$ representa la discretización longitudinal de la barra (Figura 6.1).

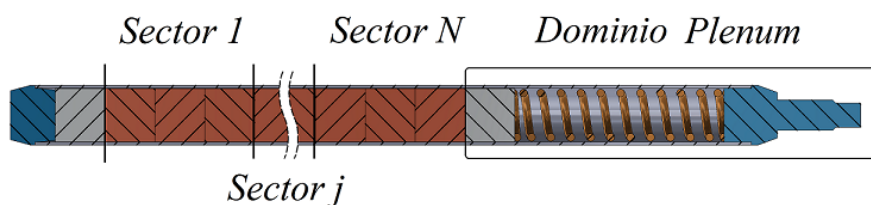


Figura 6.1: Discretización de una barra combustible de potencia en el código DIONISIO.

El principal recurso numérico utilizado en DIONISIO para tratar el dominio pastilla-gap-vaina es el Método de Elementos Finitos (MEF o FEM - *Finite Element Method*). Entre los fenómenos modelados se encuentran la distribución de la temperatura, la expansión térmica, las deformaciones elásticas y plásticas, la fluencia, el crecimiento por irradiación, la interacción mecánica entre la pastilla y la vaina, la liberación de gas de fisión, la mezcla de gases, el hinchamiento y la densificación. Además, el código incluye un grupo de subrutinas dedicadas a calcular el comportamiento del combustible en condiciones de alto quemado. Por otra parte, el inventario de gases de fisión se calcula actualmente con un modelo de difusión, considerando granos de combustible esféricos y un esquema de elementos finitos unidimensional. Los problemas de tensión-deformación y conducción del calor son no lineales debido a la plasticidad y a la dependencia de la temperatura de la conductividad térmica. Esto requiere un procedimiento iterativo para calcular las variables en cada nodo de la discretización.

En la Figura 6.2 se encuentra un esquema general del algoritmo utilizado en el código DIONISIO para simular el comportamiento de combustibles nucleares; **Ntime** hace referencia a la cantidad total de pasos de tiempo, mientras que **Nsec** es la cantidad de sectores en los que se divide longitudinalmente la barra. El bloque resaltado en color verde muestra el lugar donde se incluyeron los nuevos modelos de hinchamiento y liberación de gases de fisión dentro del esquema general de DIONISIO.

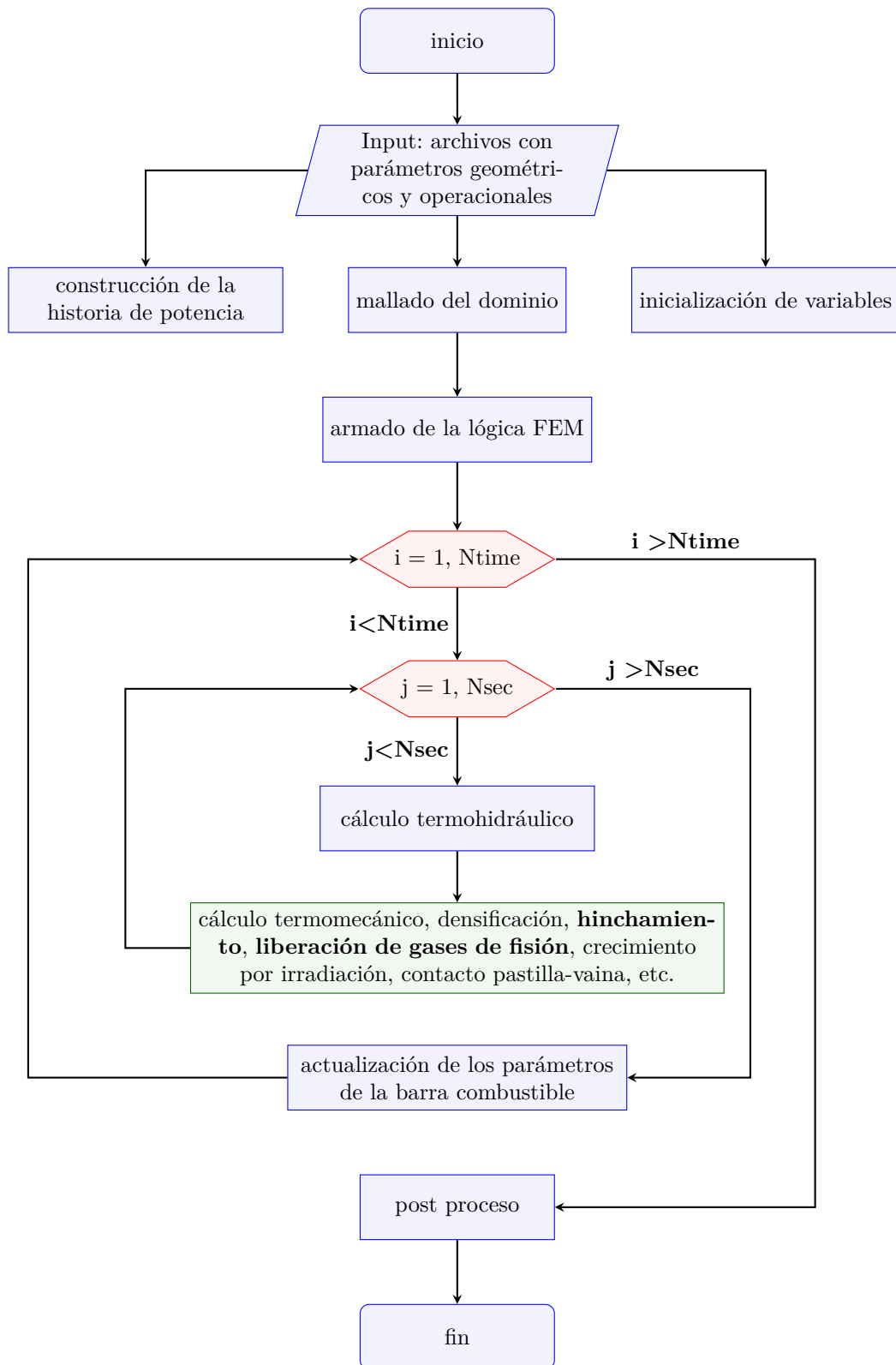


Figura 6.2: Algoritmo general del código DIONISIO.

6.2. Incorporación de los modelos al código DIONISIO

La arquitectura modular del código DIONISIO permite la incorporación del modelo de hinchamiento y liberación de gases de fisión desarrollado de manera relativamente sencilla, previa compatibilización de entradas —temperatura, tasa de fisiones, quemado, presión hidrostática y tamaño de grano— y salidas —hinchamiento y gas liberado—. Debido a la gran cantidad de fenómenos interrelacionados entre sí que simula DIONISIO, el modelo desarrollado en este trabajo tendrá influencia en varios aspectos del comportamiento de la barra combustible. A continuación se enumeran algunos de estos fenómenos:

- a) Por un lado, el hinchamiento tendrá un aporte a la deformación plástica del combustible. En DIONISIO se considera al combustible como un sólido isotrópico, con lo cual la contribución del hinchamiento a la deformación plástica estará dada por [2]:

$$\varepsilon_{fuel}^{sw+d} = \frac{1}{3} \left[\left(\frac{\Delta V}{V} \right)_{intrag.} + \left(\frac{\Delta V}{V} \right)_{interg.} + \left(\frac{\Delta V}{V} \right)_{prod.sol.} + \left(\frac{\Delta V}{V} \right)_{densif.} \right] \quad (6.1)$$

donde la contribución de la densificación se calcula a partir de un modelo desarrollado en trabajos previos [3, 4].

- b) Por otro lado, el aumento en la porosidad generado por la población de burbujas intra-e intergranulares va a tener una influencia directa en la conductividad térmica del combustible. La conductividad térmica K (W/cm°C) utilizada en DIONISIO está dada por una función del tipo [5]:

$$K = (1 - p^{2/3}) k(T, BU, Gd) \quad (6.2)$$

donde p es la fracción de porosidad en volumen, y $k(T, BU, Gd)$ es una compleja función que depende de la temperatura T , el quemado BU , y la fracción en peso de gadolinio¹ Gd .

- c) El modelo de liberación de gases de fisión tiene influencia en la conductividad térmica del gap. Generalmente, la atmósfera gaseosa del gap se compone inicialmente de He. A medida que se incorporan los gases de fisión Xe y Kr, la atmósfera gaseosa modifica su composición, con lo cual la conductividad térmica de la mezcla de gases estará dada por una función de la forma [2]:

$$K_{gas,mix} = \sum_{i=1}^n \beta_i x_i \quad (6.3)$$

donde $i = \text{He, Xe, Kr, etc.}$, x_i es la fracción de gas i presente en la mezcla, y β_i es una función que tiene en cuenta el peso molecular y la conductividad térmica de cada

¹El gadolinio es un veneno quemable que se distribuye en las barras combustibles del núcleo para controlar su reactividad.

especie. La conductividad térmica de cada especie k_i depende de la temperatura y se representa funcionalmente como:

$$k_i = A_i T^{B_i} \quad (6.4)$$

con A_i y B_i constantes.

- d) Por último, los gases liberados al volumen libre de la barra combustible incrementarán la presión interna. Inicialmente, la atmósfera de He de la barra combustible se encuentra presurizada a ~ 2 MPa para compensar parcialmente el efecto de la presión externa del refrigerante (en general, agua a ~ 15 MPa) y evitar el colapso de la vaina [6]. A medida que procede la irradiación, DIONISIO tiene en cuenta la contribución de la liberación de Xe y Kr para calcular la variación de la presión interna. Por otra parte, la presión interna también se encuentra afectada por el modelo de hinchamiento, que en conjunto con el *creep* y el crecimiento por irradiación de la vaina, tienden a disminuir el volumen libre de la barra. De esta manera, el volumen de la cavidad es calculado por DIONISIO para cada paso de tiempo a partir de la evolución de la geometría de la pastilla y la vaina. Típicamente, en diseños estándar, el volumen libre inicial de la barra es de $\sim 18 \text{ cm}^3$, y termina disminuyendo hasta alcanzar un valor de $\sim 10 \text{ cm}^3$ al final del período de irradiación [6].

En cuanto a las diferencias entre los modelos de hinchamiento y liberación de gases desarrollados en este trabajo de tesis y los modelos previamente implementados en DIONISIO, se pueden mencionar:

- a) En el modelo actual, la ecuación de difusión se resuelve mediante métodos numéricos computacionalmente eficientes. En el modelo anterior la ecuación se resuelve mediante un esquema de elementos finitos en el radio del grano, lo cual es significativamente más costoso desde el punto de vista computacional.
- b) En el modelo actual, la evolución de la población de burbujas intragranulares depende del quemado y la temperatura, y se calculan a partir de ecuaciones que involucran parámetros físicos susceptibles de ser medidos experimentalmente, tal como se describe en la Sección 2. El modelo anterior utiliza relaciones empíricas para el radio R_{ig} y la concentración N_{ig} de burbujas, que únicamente consideran una dependencia con la temperatura:

$$R_{ig} = 5 \times 10^{-10} \left[1 + 106 \exp \left(\frac{-8702.7}{T} \right) \right]$$

$$N_{ig} = \frac{1.52\eta}{\pi l_f (R_{ig} + Z_0)}$$

siendo η el número de burbujas nucleadas por fragmento de fisión, l_f la longitud del camino del fragmento de fisión (m), Z_0 el radio de influencia del camino de un

fragmento de fisión (m) y T la temperatura (K).

- c) El modelo actual incorpora una descripción de los efectos de la coalescencia de burbujas y la difusión de vacancias en la evolución de la población de burbujas intergranulares, y su influencia en la formación del camino de percolación que conlleva a la liberación de gases de fisión hacia el volumen libre. El modelo anterior no tiene en cuenta estos fenómenos, simplificando el problema mediante el cálculo del número de átomos por unidad de área que satura el borde de grano, suponiendo que es válida la ecuación de gases ideales y considerando un tamaño de burbuja fijo, con un radio de curvatura de 500 nm.
- d) El modelo actual incorpora el efecto de las microfisuras en bordes de grano que se da en transitorios de temperatura. El modelo anterior no tiene en cuenta este fenómeno.

6.3. Experimentos CONTACT

La serie de experimentos CONTACT [7] fue un programa de pruebas realizadas en el reactor Siloe (Grenoble, Francia) por parte de la Comisión de Energía Atómica de Francia (CEA) y Framatome. Los experimentos fueron realizados en barras cortas compuestas de cinco pastillas de UO_2 y vainas de Zr-4, en un diseño PWR típico de 17x17. El objetivo de los experimentos consistía en lograr un mejor entendimiento del desempeño de las barras combustibles. Cada barra fue instrumentada con termocuplas para la medición de la temperatura en la línea central del combustible durante la irradiación, un instrumento para medir el diámetro exterior de la vaina durante la irradiación, e instrumentos para medir la liberación de gases de fisión, entre otros. Estos resultados experimentales permiten la comparación con el modelo de hinchamiento y liberación de gases de fisión implementados en este trabajo; en particular, los resultados de las mediciones del diámetro exterior de la vaina permiten detectar el inicio del contacto mecánico entre el combustible y la vaina (PCMI), el cual se genera como producto de los cambios dimensionales tanto de la pastilla (debido al hinchamiento y la densificación) como de la vaina (debido a los fenómenos de *creep* y crecimiento por irradiación). De esta manera, esta serie de experimentos permite probar el funcionamiento del nuevo modelo de hinchamiento desarrollado en este trabajo en conjunto con los diferentes modelos ya presentes en el código DIONISIO.

La serie se compone de tres experimentos, a saber:

- CONTACT-1 (C1): La irradiación se realizó entre Octubre de 1978 y Julio de 1980, a

Tabla 6.1: Dimensiones, parámetros de irradiación y principales características de la serie de experimentos CONTACT.

Item	Parámetro	C-1	C-2	C-2b	Unidades
Pastillas	Material	UO_2	UO_2	UO_2	-
	Largo	14	14	14	mm
	Diámetro	8.19	8.19	8.19	mm
	Profundidad del dish	0.31	0.31	0.31	mm
	Radio del dish	14.73	14.73	14.73	mm
	Tamaño de grano	7	7	7	μm
Vaina	Material	Zr-4	Zr-4	Zr-4	-
	Diámetro interno	8.36	8.36	8.36	mm
	Diámetro externo	9.50	9.50	9.50	mm
Plenum	Largo	7.7	7.7	7.7	mm
Columna	Número de pastillas	5	5	5	-
	Enriquecimiento	4.95	4.95	4.95	%
	Densidad	95	95	95	%TD
Parámetros de irradiación	Potencia lineal nominal	40	25	25	kW/m
	Potencia lineal pico	41	28	25.5	kW/m
	Potencia lineal promedio	36	24.3	24.4	kW/m
	Flujo rápido ($E > 1$ MeV)	$6.5\text{E}17$	$4.5\text{E}17$	$6.5\text{E}17$	neutrones/ m^2s
	Quemado alcanzado	22	5.3	12	MWd/kgU
	Temperatura externa de la vaina	330	330	330	$^{\circ}\text{C}$
Presión	Presión interna de la barra	1.0 (He)	0.1-0.2 (He)	0.1-0.2 (He)	MPa
	Presión del sistema	13	13	13	MPa

una potencia lineal relativamente constante de 40 kW/m hasta alcanzar un quemado de ~ 22 MWd/kgU.

- CONTACT-2 (C2): La irradiación se realizó entre Enero de 1979 y Noviembre de 1979, a una potencia lineal relativamente constante de 25 kW/m hasta alcanzar un quemado de ~ 5.5 MWd/kgU.
- CONTACT-2b (C2b): La irradiación se realizó entre Abril de 1980 y Junio de 1981, a una potencia lineal de ~ 25 kW/m hasta alcanzar un quemado de ~ 12.4 MWd/kgU.

En la Tabla 6.1 se muestran los parámetros principales que describen la serie de experimentos CONTACT, y que son utilizados como datos de entrada al código DIONISIO. En las Figuras 6.3, 6.4 y 6.5 se muestran los resultados experimentales y simulados para la temperatura central de la barra combustible, la liberación de gases de fisión, y el cambio de longitud en el diámetro exterior de la vaina dD , que se calcula como la diferencia entre el diámetro exterior de la vaina en cada instante de tiempo y el diámetro exterior inicial.

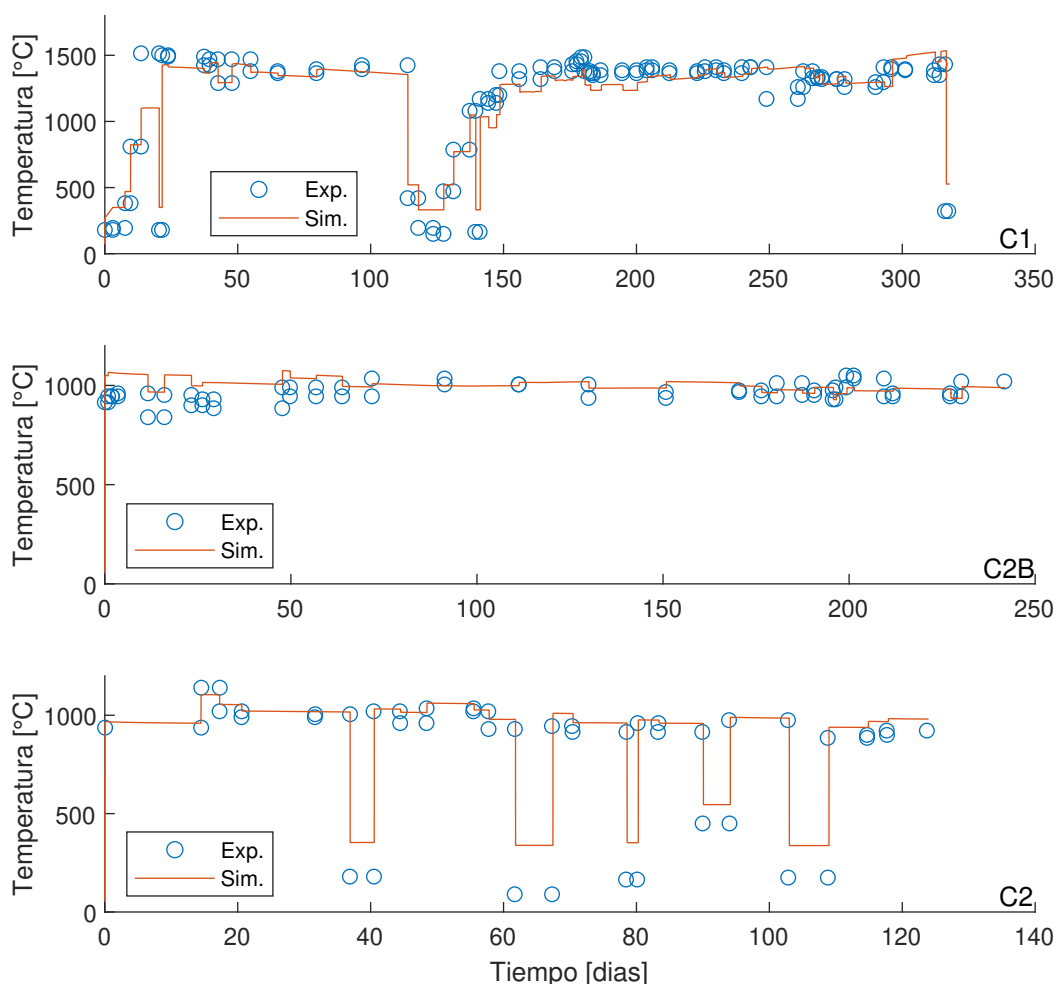


Figura 6.3: Datos experimentales y simulados para la temperatura de la línea central del combustible en la serie de experimentos CONTACT.

Como se puede observar, la predicción de la temperatura en la línea central del combustible calculada con DIONISIO resulta ser satisfactoria para los tres experimentos, con

lo cual se puede deducir que la influencia de los modelos de hinchamiento y liberación de gases en la conductividad térmica resulta ser aceptable.

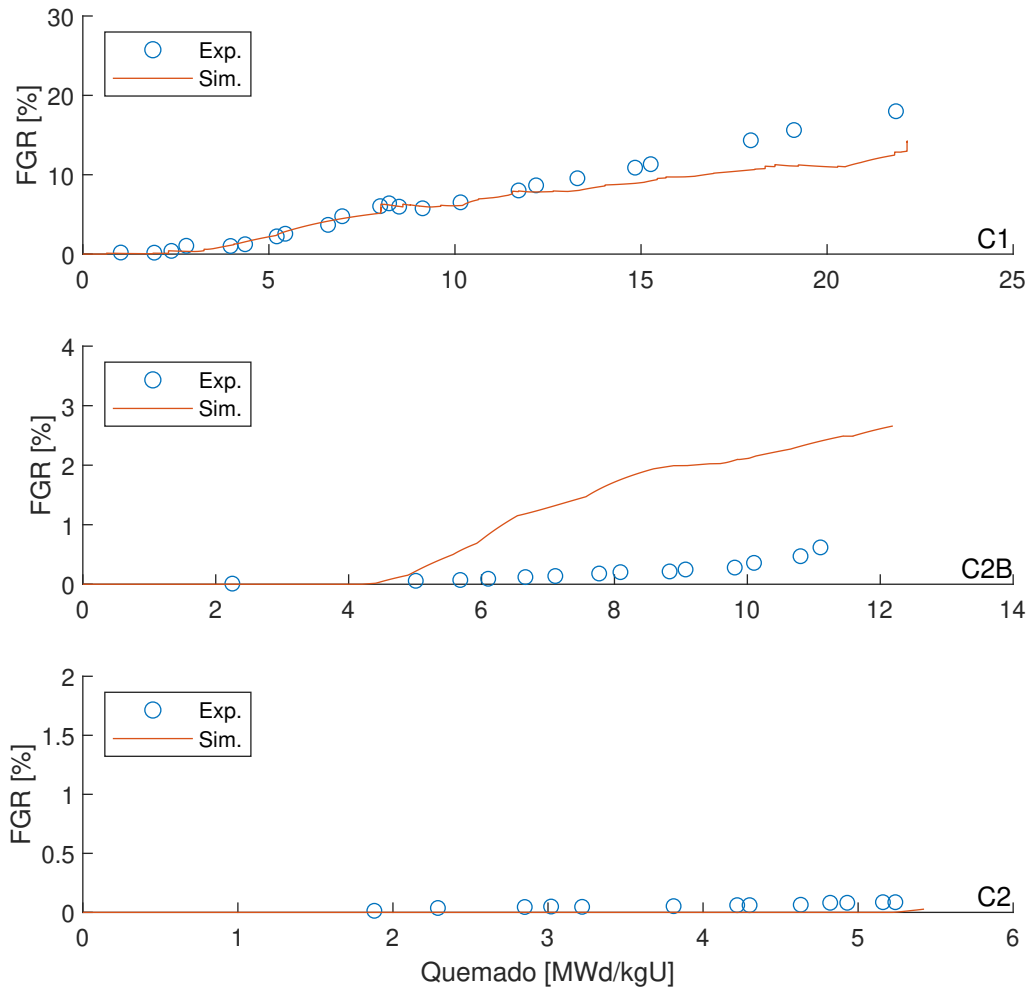


Figura 6.4: Datos experimentales y simulados para la liberación de gases de fisión en la serie de experimentos CONTACT.

Con respecto a la liberación de gases de fisión, se puede notar que el experimento CONTACT-1 presenta mayores niveles de liberación debido a las mayores temperaturas alcanzadas. Por otra parte, los experimentos CONTACT-2 y CONTACT-2b presentan niveles de liberación menores al 2% a causa de las menores temperaturas. El rango de liberación de 0 a 10% resulta ser el más complejo de simular mediante códigos de combustible [8], debido a su proximidad con el umbral al cual comienza la liberación, lo cual conlleva a que pequeños cambios en los parámetros involucrados generen grandes variaciones en la liberación de gases, tal como fue discutido en la Sección 3.2. Considerando que el rango de tolerancia asociado generalmente a predicciones de FGR mediante códigos de combustible se corresponde con un factor de ± 2 —e incluso, un factor de ± 3 se puede considerar aceptable para niveles de liberación menores al 10% [8]—, se puede concluir que el modelo logra reproducir satisfactoriamente la evolución de la liberación de gases.

Por último, la medición del diámetro de la vaina en función del quemado en el experimento CONTACT-1 indica que existe una reducción inicial del diámetro debido princi-

palmente a los efectos del *creep* y el crecimiento por irradiación, seguido de una expansión gradual luego de alcanzado el contacto pastilla-vaina por efecto del hinchamiento, a un nivel de quemado alrededor de ~ 8 MWd/kgU. En el caso del experimento CONTACT-2b, cuyas condiciones térmicas son menos demandantes que el caso anterior, el contacto se produce hacia el final del período de irradiación (~ 10 MWd/kgU), luego de una disminución progresiva del diámetro externo de la vaina por las mismas razones citadas previamente. Se puede notar que la simulación sigue la misma tendencia que los datos experimentales, aunque predice un mayor cambio en la longitud del diámetro. Por otra parte, en el informe del experimento se menciona que el aumento en el diámetro que se observa al comienzo del caso CONTACT-2b no pudo explicarse, por lo que no debe tenerse en cuenta para evaluar esta comparación. Con respecto al experimento CONTACT-2, no existen datos experimentales para comparar con el modelo debido a una falla en el instrumento utilizado para la medición del diámetro de la vaina. La simulación indica que en este caso no se alcanzó el contacto.

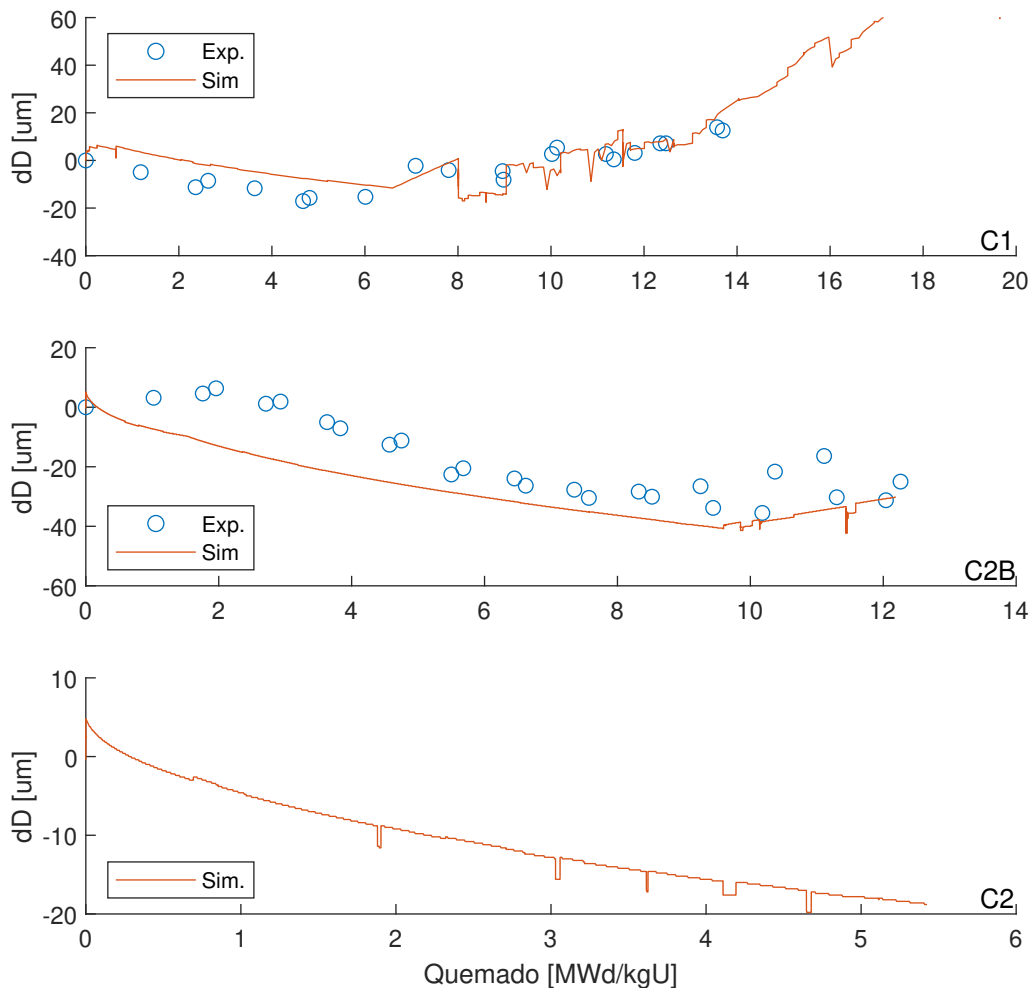


Figura 6.5: Datos experimentales y simulados para la variación del diámetro externo de la vaina en la serie de experimentos CONTACT. No hay resultados disponibles para el experimento CONTACT-2 debido a una falla en el instrumento de medición.

6.4. Experimentos RISØ-3

El Laboratorio Nacional Risø (Dinamarca) llevó a cabo tres programas de irradiación donde se involucran rampas de potencia con el objetivo de investigar la liberación de gases de fisión y los cambios en la microestructura del combustible. El tercer proyecto, denominado RISØ-3 [9], se desarrolló entre 1986 y 1990 y es de especial interés para la validación de este trabajo, ya que cuenta con mediciones de la evolución de la presión y la temperatura central del combustible durante el período en el cual fue sometido a las distintas rampas de potencia.

Los experimentos realizados como parte del programa RISØ-3 se clasifican en:

- ANx (x = 1, 2, 3, 4, 8, 10, 11): La irradiación base fue realizada en el reactor PWR Biblis A (Alemania) hasta alcanzar un quemado de ~ 38 MWd/kgUO₂.
- GEx (x = 2, 4, 6, 7): La irradiación base fue realizada en el reactor BWR Quad Cities 1 (Estados Unidos) hasta alcanzar un quemado de ~ 20 -40 MWd/kgUO₂.

Luego del período de irradiación base, cada uno de estos combustibles fue sometido a distintas rampas de potencia en el reactor DR3 (Dinamarca). Previamente, se re-fabricó el combustible para ser instrumentado con termocuplas y/o transductores de presión. En general, en las rampas de potencia se alcanzó una potencia lineal de entre 350-400 W/cm, en tiempos que van entre unas pocas horas y hasta seis días de duración. En la Figura 6.6 se muestra, a modo de ejemplo, la historia de potencia del experimento AN3, con su período de irradiación base y el transitorio de potencia. En la Tabla 6.2 se muestran las dimensiones y principales características de la serie de experimentos, utilizados como datos de entrada para el código DIONISIO.

En la Figura 6.7 se muestran los resultados obtenidos para la liberación de gases de fisión al final del período de irradiación utilizando el modelo desarrollado en este trabajo

Tabla 6.2: Dimensiones y principales características de la serie de experimentos RISØ-3.

Item	Parámetro	ANx	GEx	Unidades
Pastillas	Material	UO ₂	UO ₂	-
	Largo	2.95	10.41	mm
	Diámetro	9.053	10.41	mm
	Profundidad del dish	0.16	No dish	mm
	Radio del dish	43.66	No dish	mm
	Tamaño de grano	6.0	12.1	µm
Vaina	Material	Zr-4	Zr-2	-
	Diámetro interno	9.25	10.63	mm
	Diámetro externo	10.92	12.27	mm
Plenum	Largo	61	140	mm
	Número de pastillas	78	72	-
Columna	Enriquecimiento	2.95	3.00	%
	Densidad	93.92	96.00	%TD
Presión	Presión interna de la barra	2.52 (He)	0.29 (He)	MPa
	Presión del sistema	15.52	7.24	MPa

y el modelo implementado previamente en DIONISIO. El modelo nuevo tiende a subestimar el nivel de liberación al final del período de irradiación, sin embargo, se realizó una comparación entre ambos modelos utilizando el error cuadrático medio² (RMSE), el cual resultó ser de 12.4 % para el modelo implementado en este trabajo y de 15.0 % para el modelo anterior. Esto lleva a concluir que el modelo desarrollado permite realizar predicciones más realistas acerca de la liberación de gases de fisión en esta serie de experimentos en particular. Uno de los experimentos que presenta mayor desviación en ambos modelos, ubicándose en ambos casos por fuera de la banda de incertidumbre asociada típicamente para las simulaciones de FGR mediante códigos de combustible, es el experimento AN11. Este experimento tiene la particularidad de liberar poca cantidad de gas (5.1 %) debido a las bajas temperaturas alcanzadas. Por las mismas razones citadas en la Sección anterior, este valor se encuentra dentro del rango de liberación en el cual la tolerancia para el valor calculado resulta ser mayor, con lo cual es esperable que los modelos no permitan reproducir consistentemente estos resultados experimentales.

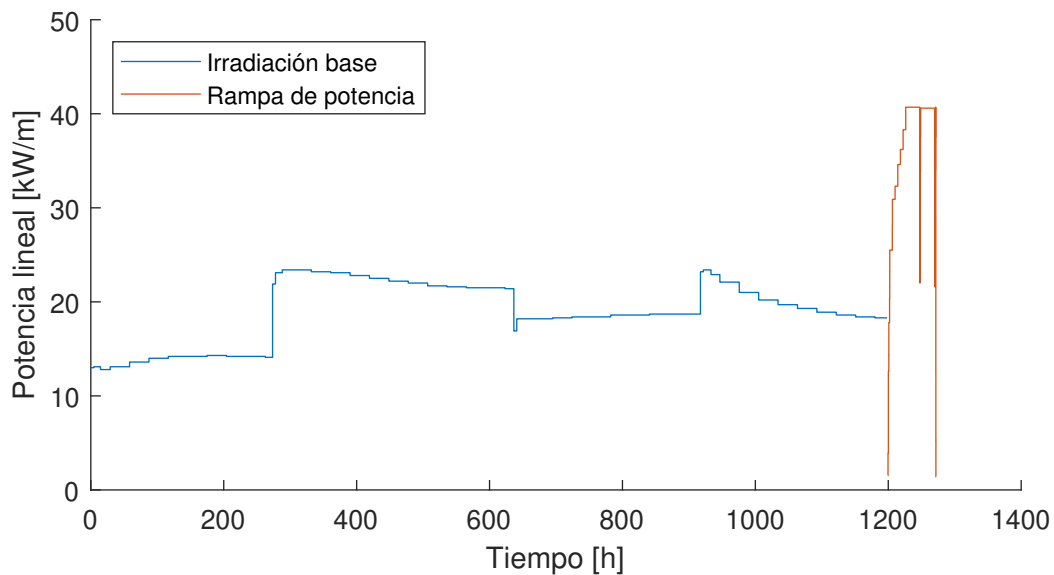


Figura 6.6: Historia de potencia para el experimento AN3.

En la Figura 6.8 se muestran, a modo de ejemplo, los resultados obtenidos para el experimento AN3, donde se considera la evolución de la temperatura en la línea central del combustible, la liberación de gases de fisión, la presión interna de la barra y el tamaño de grano. El gráfico muestra tanto la simulación con los nuevos modelos de hinchamiento y liberación de gases de fisión implementados en este trabajo, así como también la simulación realizada con los modelos previamente implementados en DIONISIO. El eje temporal hace referencia al tiempo en que se sometió al combustible a la rampa de potencia, ya que solamente se tienen datos experimentales para este período de irradiación, luego

²Se define al error cuadrático medio entre una serie de n valores calculados P_i y una serie de n valores medidos E_i como:

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |E_i - P_i|^2}$$

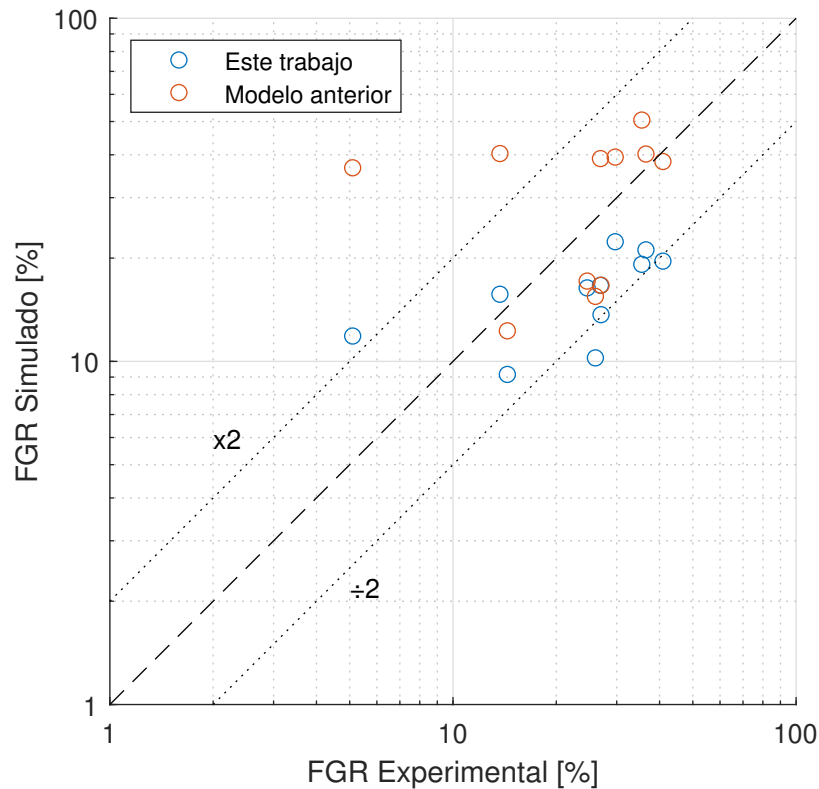


Figura 6.7: Comparación entre el FGR alcanzado al final del período de irradiación para la serie de experimentos RISØ-3, utilizando el modelo anterior y el modelo implementado en esta tesis.

de que el combustible haya sido instrumentado. En primer lugar, se puede notar que ambas simulaciones dan una temperatura superior a la medida experimentalmente; sin embargo, el nuevo modelo logra un mejor ajuste. En cuanto a la liberación de gases, se tienen datos experimentales obtenidos a partir de los transductores de presión (*online*), así como también la medición realizada por punzonado de la barra al final del período de irradiación (*puncturing*). Las simulaciones muestran que el modelo anterior sobreestima el FGR, mientras que el modelo nuevo lo subestima. No obstante, el nuevo modelo logra reproducir de manera más precisa la evolución del FGR; por ejemplo, el modelo anterior no tiene en cuenta la liberación repentina de gas (*burst release*) que ocurre en el transitorio de enfriamiento y calentamiento ubicado a las 50 horas de la rampa, aproximadamente. El modelo desarrollado en este trabajo, en particular con la inclusión de un modelo de micro-cracking, logra reproducir este fenómeno, aunque con una magnitud menor a la observada experimentalmente. Barani et al. [10] también observan este comportamiento en el modelo, y atribuyen esta discrepancia al método experimental utilizado, considerando que parte de ese gas liberado rápidamente se corresponde en realidad a gas que fue liberado previo al transitorio y que fue detectado de manera tardía por el transductor de presión. Por otra parte, ninguno de los dos modelos logra reproducir correctamente la tasa de liberación que se observa desde el inicio de la rampa hasta el inicio del transitorio. Esto puede ser debido a que la medición del FGR con los transductores de presión tiene en cuenta también la evolución del gas He, que no se considera en el resultado simulado. Se puede

notar que la evolución del FGR medido experimentalmente sigue la misma tendencia que la evolución de la presión interna de la barra, donde el modelo implementado en este trabajo logra un ajuste satisfactorio. Por último, el modelo para la evolución del tamaño de grano utilizado por la versión anterior del código no predice crecimiento de grano en la rampa de temperatura, mientras que el modelo de Khoruzhii et al. implementado en este trabajo predice un crecimiento hasta alcanzar los $9\mu\text{m}$ al final del período de irradiación, aproximadamente. Este valor se condice de mejor manera con el resultado obtenido experimentalmente, que resultó ser de $12\mu\text{m}$.

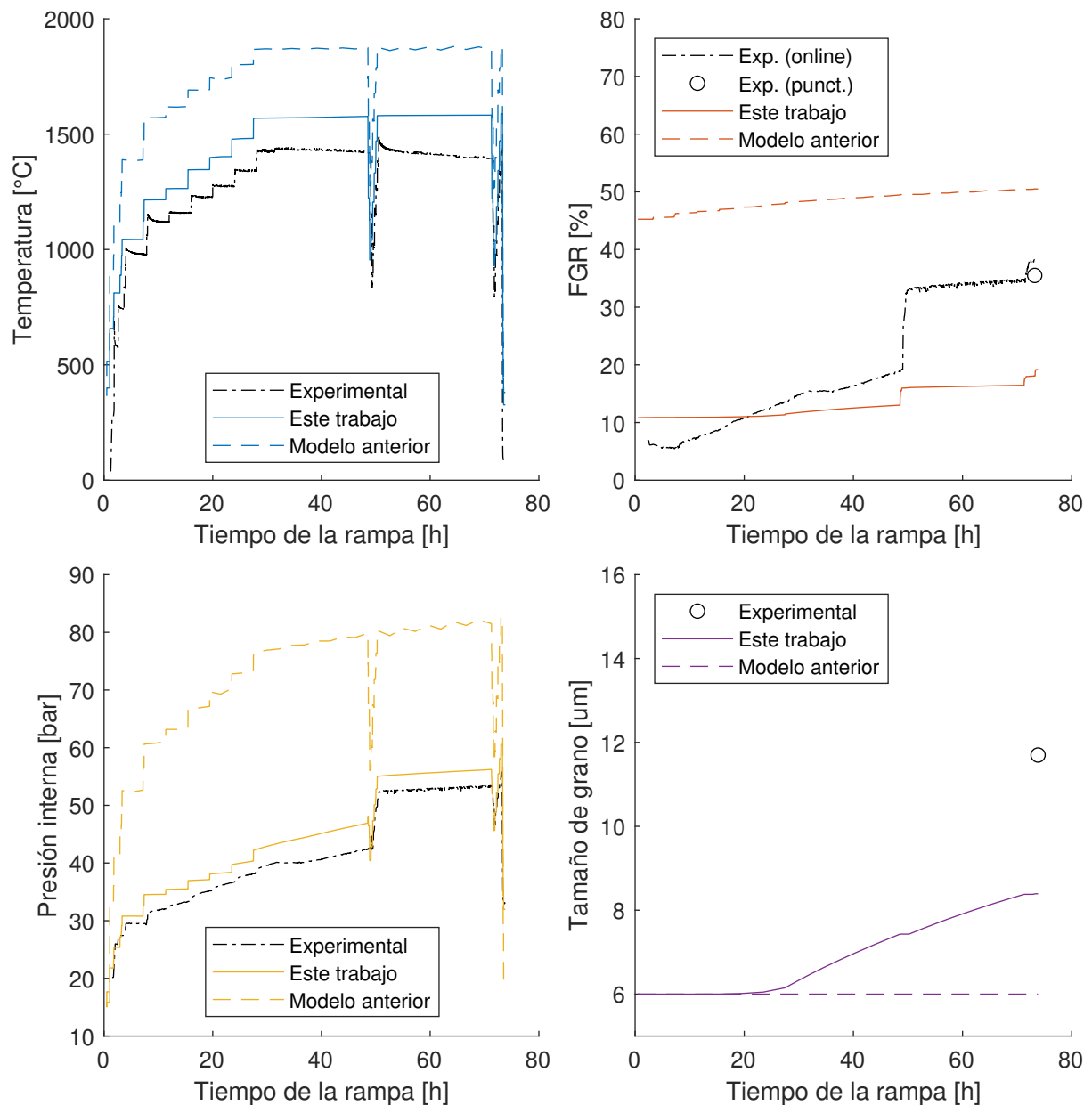


Figura 6.8: Resultados obtenidos experimentalmente y mediante la simulación con los nuevos modelos implementados en este trabajo y los modelos implementados previamente en DIONISIO para el experimento AN3. Se contempla la evolución de la temperatura de la línea central del combustible, la liberación de gases de fisión, la presión interna de la barra y el tamaño de grano.

Por último, otra de las ventajas que aporta este nuevo modelo se vincula con una

reducción en el tiempo de ejecución de cada experimento. Esta disminución se debe, principalmente, a la implementación de los nuevos métodos de resolución para la ecuación de difusión discutidos en la Sección 2. Como fue mencionado previamente, estos algoritmos son significativamente más eficientes que el método de resolución en el que estaba basado el modelo anterior —que consistía en la utilización de un esquema de modelos finitos unidimensional aplicado sobre el radio del grano esférico—, sin que esto implique una gran pérdida en la precisión. A modo de demostración, en la Figura 6.9 se puede observar el tiempo de ejecución total de cada experimento, donde el único cambio en los parámetros de entrada a DIONISIO consiste en la utilización del modelo anterior o el modelo desarrollado en este trabajo para el hinchamiento y liberación de gases de fisión.

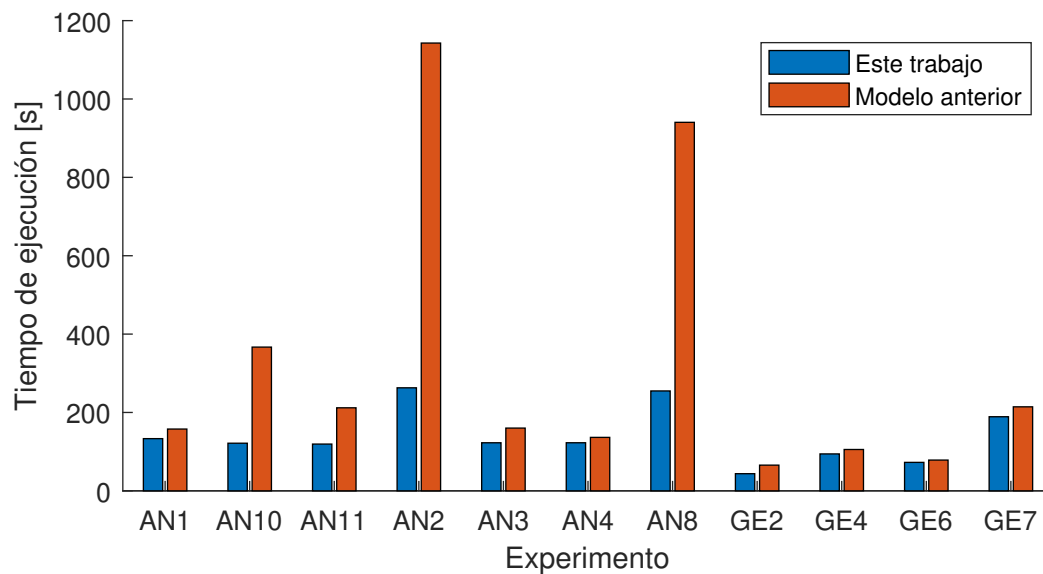


Figura 6.9: Tiempo de ejecución para la simulación de cada experimento de la serie RISØ-3, utilizando el modelo anterior y el modelo implementado en esta tesis.

Las simulaciones fueron realizadas en una computadora personal que cuenta con un procesador Intel Core i5-12600K 12th Gen 3.7 GHz (16 CPUs) y 32GB de RAM. Se puede notar que el modelo implementado logra una disminución en los tiempos de ejecución en todos los experimentos analizados. El tiempo de ejecución promedio para todos los experimentos es de 139.72 s para este trabajo, mientras que para el modelo anterior se corresponde con 323.33 s, lo cual implica una reducción de más de tres minutos, o del 56.8 % en el tiempo de ejecución. Esta reducción en el tiempo de ejecución resulta ser significativa, sobre todo en aquellos casos donde se deben simular series compuestas por varios experimentos, experimentos complejos con varios pasos de potencia o número de sectores, o si se deben correr varias simulaciones para analizar la influencia de algún parámetro en particular. Por otra parte, se puede notar que los experimentos AN2 y AN8 presentan un tiempo de ejecución significativamente mayor que el resto de los experimentos. Esto se debe a que, en estos casos, existe un perfil de potencia axial significativo —es decir, no se tiene la misma potencia a lo largo de toda la barra—, con lo cual fue necesario utilizar

la funcionalidad de DIONISIO que permite discretizar la barra longitudinalmente (ver Sección 6.1). A partir de los datos experimentales suministrados, se conformó una historia de potencia compuesta por 10 sectores, lo cual hace incrementar significativamente el tiempo de cálculo. Por último, se puede notar que la reducción de tiempo de ejecución más notoria se dio en el experimento AN2, donde el tiempo se redujo de 1142.8 s a 262.9 s, lo cual se corresponde a una reducción de más de 14 minutos en el tiempo de ejecución total.

Referencias

- [1] *NEA Data Bank - Computer Program Services*. Nuclear Energy Agency. URL: <https://www.oecd-nea.org/dbcps/>.
- [2] A. Soba y A. Denis. “Simulation with DIONISIO 1.0 of thermal and mechanical pellet-cladding interaction in nuclear fuel rods”. *Journal of Nuclear Materials* 374 (2008), págs. 32-43.
- [3] M. E. Cazado y A. Denis. “Model of nuclear fuel pellets densification under irradiation and isothermal conditions: Application to UO₂ fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 510 (2018), págs. 585-595.
- [4] M. E. Cazado. “Evolución microestructural en pastillas combustibles bajo irradiación”. Tesis de maestría. Universidad Nacional de General San Martín, 2019.
- [5] E. Goldberg, M. E. Loza Peralta y A. Soba. “DIONISIO 3.0: Comprehensive 3D nuclear fuel simulation through PCMI cohesive and PLENUM models”. *Journal of Nuclear Materials* 523 (2019), págs. 121-134.
- [6] F. Al Gabr, J. Ferrandis, D. Baron y P. Chantoin. “Pressure and composition of gas mixtures in fuel rods for pressurised water reactors by an ultrasonic sensor”. International Conference on WWER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support. Institute for Nuclear Research y Nuclear Energy. Varna, Bulgaria, 2003.
- [7] *IFPE/CONTACT, PWR Fuel Performance Tests Siloe Reactor*. Nuclear Energy Agency. URL: <https://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/NEA-1595/>.
- [8] G. Pastore, L. P. Swiler, J. D. Hales, S. R. Novascone, D. M. Perez, B. W. Spencer, L. Luzzi, P. Van Uffelen y R. L. Williamson. “Uncertainty and sensitivity analysis of fission gas behavior in engineering-scale fuel modeling”. *Journal of Nuclear Materials* 456 (2015), págs. 398-408.
- [9] *IFPE/RISOE-3, Fuel Performance Data from 3rd Risoe Fission Gas Release*. Nuclear Energy Agency. URL: <https://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/NEA-1493/>.
- [10] T. Barani, E. Bruschi, D. Pizzocri, G. Pastore, P. Van Uffelen, R. L. Williamson y L. Luzzi. “Analysis of transient fission gas behaviour in oxide fuel using BISON and TRANSURANUS”. *Journal of Nuclear Materials* 486 (2017), págs. 96-110.

7. Conclusiones

En este trabajo se desarrolló un modelo para predecir el hinchamiento en pastillas combustibles de UO_2 sometidas a condiciones de irradiación. El modelo tiene en cuenta la contribución de los productos de fisión sólidos y gaseosos que se generan como producto de las fisiones de los átomos pesados de uranio. La contribución al hinchamiento por parte de cada tipo de producto de fisión se modeló en forma modular, siendo el módulo dedicado al comportamiento de los gases de fisión el más preponderante para este trabajo debido a que reviste una mayor complejidad por su capacidad de precipitar en forma de burbujas.

A su vez, el comportamiento de los productos de fisión gaseosos se modeló en forma de dos submódulos acoplados: por un lado, se tiene el comportamiento del gas intragranular, que trata acerca de los átomos de gas que son retenidos en el interior del grano, y, por otro lado, se modela la evolución del gas intergranular, referente a los átomos de gas que se alojan en los bordes de grano. En cuanto al módulo de gas intragranular, el modelo implicó la resolución de la ecuación de difusión en coordenadas esféricas, teniendo en cuenta distintos fenómenos tales como la producción de átomos de gas debido a los eventos de fisión, el proceso de nucleación de burbujas, su crecimiento debido a la acumulación de átomos de gas, y su destrucción debido a la interacción con fragmentos energéticos de fisión. En esta parte del trabajo se analizaron distintos métodos numéricos presentes en la literatura para la resolución de la ecuación de difusión, con el objetivo de mejorar la eficiencia computacional del código sin perder demasiada precisión. Con respecto al modelado del gas intergranular, se consideró que los átomos de gas disueltos que llegan al borde de grano pasan a formar parte de burbujas con morfología lenticular de manera inmediata. El crecimiento de las burbujas se da por esta acumulación de átomos de gas, a la que también se le suma la absorción de vacancias controlada por difusión. Por otra parte, el modelo también tiene en cuenta el fenómeno de coalescencia, es decir, la interferencia mecánica entre las mismas, que genera como resultado una menor cantidad de burbujas pero de mayor tamaño. Como resultado de los fenómenos de crecimiento y coalescencia, se produce eventualmente la interconexión de las burbujas, formando una red de túneles que permite la liberación de átomos de gas hacia el volumen libre de la barra combustible. El modelo implementado es capaz de representar el acople entre los fenómenos de liberación de gas y el hinchamiento, resultante en una disminución de la tasa de hinchamiento gaseoso a partir del comienzo de la liberación. Finalmente, el modelo también tiene en cuenta el fenómeno de micro-fisuración de los bordes de grano, que genera una liberación repentina de gas en transitorios de potencia. Los módulos de gas intragranular e intergranular fueron validados mediante mediciones experimentales, en las cuales se consideraron tanto historias de potencia constantes como con transitorios, logrando un buen acuerdo en ambos casos.

Con respecto al hinchamiento por productos sólidos de fisión, se encontró que no existen modelos mecanísticos lo suficientemente avanzados como para ser implementados en códigos de combustibles, por lo cual se realizó una revisión de los distintos modelos empíricos presentes en la literatura, en los cuales se considera que el hinchamiento aumenta linealmente con el quemado.

Adicionalmente, como el modelo difusivo para el comportamiento de los gases de fisión se aplica sobre el grano del óxido combustible a temperaturas en las cuales es posible su crecimiento, se procedió a realizar una revisión bibliográfica de los distintos modelos de crecimiento de grano equiaxial presentes en la literatura. Se analizaron distintos modelos que consideran o no el efecto de la irradiación, y se estudió su influencia sobre los modelos de hinchamiento y liberación de gases de fisión. Por último, se realizó un análisis estadístico para determinar el modelo que mejor se ajusta a una base de datos experimental que presenta resultados de crecimiento de grano para combustibles con distintas microestructuras y condiciones de irradiación.

Todos los modelos desarrollados fueron incorporados al código de combustible DIONISIO para testear su comportamiento acoplado a los diferentes modelos termomecánicos disponibles en el código. Se escogieron dos series de experimentos que se encuentran disponibles en las bibliotecas de el OIEA y que presentan resultados que sirven como referencia para la validación de los modelos aplicados a barras combustibles completas. Se pudo comprobar que los nuevos modelos desarrollados en este trabajo de tesis arrojan resultados más precisos que los obtenidos mediante los anteriormente implementados en el código. Además, se logró reducir significativamente el tiempo de simulación total de cada experimento, como resultado de la implementación de los nuevos esquemas numéricos para la resolución de la ecuación de difusión mencionados previamente.

Trabajos futuros

A continuación se describen los posibles trabajos a futuro que surgen como producto de esta tesis:

- En primer lugar, se plantea extender el módulo dedicado al comportamiento del gas intragranular para considerar el efecto del crecimiento acelerado de las burbujas (*bubble coarsening*) en condiciones de rampas de potencia y combustibles de alto quemado. En la literatura existen varios enfoques posibles para tratar este fenómeno. En algunos modelos empíricos se considera que el crecimiento se activa a partir de un cierto umbral de temperatura, a partir del cual el radio promedio de las burbujas evoluciona exponencialmente con el tiempo hasta alcanzar un valor de saturación de 100 nm. Otros modelos, de carácter mecanístico, tienen en cuenta el rol de las dislocaciones, que actúan como fuentes de vacancias para las burbujas intragranulares. Por último, existen modelos que, además de considerar el efecto de las dislocaciones, incorporan una reducción en la eficiencia del fenómeno de re-disolución a medida que

incrementa el radio de las burbujas.

- En segundo lugar, se puede considerar extender el módulo dedicado al comportamiento del gas intergranular para contemplar el efecto de la re-disolución de las burbujas intergranulares. En general, existen dos criterios en la literatura para modelar este efecto; por un lado, se tiene el modelo de Olander, el cual agrega un término fuente adicional a la ecuación de difusión, y por otro lado, el modelo de Turnbull, quien propone cambiar la condición de contorno de sumidero infinito (Ecuación 2.6) a una del tipo $\psi(a, t) = b\lambda N/2D$, donde b es el parámetro de re-disolución para las burbujas intergranulares, λ la distancia a la cual se depositan los átomos re-disueltos dentro del grano (es decir, la profundidad de la capa de re-disolución), N el número de átomos por unidad de área de borde de grano y D el coeficiente de difusión.
- Con respecto a los modelos de crecimiento de grano, se puede plantear una revisión similar a la realizada para los modelos de crecimiento de grano equiaxial, pero teniendo en cuenta el crecimiento de grano columnar. Esto permitiría ampliar el rango de validez del código para mayores temperaturas.
- Por último, se propone evaluar el comportamiento acoplado de los nuevos modelos de hinchamiento y liberación de gases de fisión implementados en DIONISIO con otros experimentos disponibles en la base de datos de el OIEA, de forma tal de continuar con su validación en distintas condiciones de operación. A modo de ejemplo, se pueden mencionar la serie de experimentos SUPER-RAMP e INTER-RAMP para la validación del modelo de liberación de gases, y los experimentos REGATE para la validación del modelo de hinchamiento.