

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

**Desarrollo e inclusión de modelos para nuevos materiales
destinados a combustibles de tecnología avanzada en el
Código DIONISIO^(*)**

por Mag. Ing. Matias Ezequiel Loza Peralta

Director

Dr. Alejandro Soba

^(*) Tesis para optar al título de *Doctor en Ciencia y Tecnología, Mención Materiales*

República Argentina

2024

Agradecimientos

Principalmente, a Dios por rescatarme y enseñarme cómo vivir a pesar mi mismo. Por su paciencia a pesar de los innumerables errores que cometo día a día.

A mi director Alejandro Soba por confiar en mí para este trabajo y por su paciencia casi infinita.

A la memoria de Martín Lemes quien fue también codirector de esta tesis en un inicio y recordamos con un cariño profundo.

A todos los que integran e integraron la Sección Códigos y Modelos de la Gerencia Combustibles Nucleares de la CNEA con los que compartimos muy buenos momentos: Alicia Denis, Ezequiel Goldberg, Mauricio Exequiel Cazado, Francisco Rotea, Edgar Alejandro Bea y Martín Emilio González.

A mi pastor Omar por su apoyo incondicional especialmente en el último tramo de la tesis. Por sus charlas precisas que me renovaron las fuerzas.

A Eduardo Villarino de INVAP por proveer el código CONDOR para la realización de parte de este trabajo.

Al OIEA por proveer los experimentos con los que se contrastaron los modelos presentes en esta tesis.

A la CNEA por la beca en el primer tramo de mi doctorado.

A la educación pública por permitirme el ascenso social.

A mis padres.

A mi hermana que desde chico me estimuló a crecer intelectualmente.

Al resto de mi familia tanto Loza como Peralta.

A mi congregación de La Misión que colaboraron en mi crecimiento.

Resumen

La sección Códigos y Modelos de la Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear ha venido desarrollando un código de combustible denominado DIONISIO, cuya finalidad es la simulación del comportamiento de una barra combustible típica de un reactor nuclear de potencia. El código, actualmente, cuenta con más de 70 modelos interconectados que atienden a la mayor parte de los fenómenos que ocurren bajo irradiación en condiciones normales de operación del reactor. Algunos de los fenómenos que predice el código son el comportamiento térmico y mecánico, la liberación de gases de fisión, el hinchado o swelling y la densificación de las pastillas, las condiciones termohidráulicas del canal que rodea a la barra, el crecimiento de capa de óxido, entre otros. Así mismo, el código cuenta con un módulo para simular el comportamiento de los combustibles tipo placa, diseño que se emplea comúnmente en reactores de investigación.

A través de otro trabajo de doctorado finalizado en 2021, se ha extendido el rango de predicción del código a escenarios de accidente, en particular los provocados por pérdida de refrigerante, denominados LOCA por su sigla en inglés (Loss Of Coolant Accident). Con este objetivo, se elaboraron diversos modelos que describen el comportamiento del fluido refrigerante en el canal que rodea a una barra en un reactor de potencia, aquellos que describen el comportamiento de la vaina, típicamente de la aleación Zry, como oxidación, crecimiento de fases (ZrO_2 , $\alpha\text{-Zr}$, $\beta\text{-Zr}$) a altas temperaturas y la captura y liberación de hidrógeno por la disociación de las moléculas de agua del refrigerante. También se incorporaron modelos para describir la deformación mecánica de la vaina en condiciones de gran exigencia, el englobamiento (*ballooning*) y su posible rotura catastrófica (*burst*).

El desarrollo de este complejo módulo implicó, en primer lugar, la elaboración y evaluación en forma separada de modelos para describir los diferentes procesos físicos y, posteriormente, su incorporación al código como nuevas subrutinas particulares, respetando la arquitectura, modo de ejecución y versatilidad del mismo. El nuevo módulo de accidentes permite analizar y cuantificar el comportamiento del fluido refrigerante, ya sea en simple o doble fase, evaluando en cada instante la presión del sistema, el flujo del refrigerante y la fracción de vapor en las diferentes posiciones axiales del canal. Se señala que, en un contexto de accidente, la rápida variación que experimentan las condiciones a las que está sometida la barra combustible, da lugar a una mayor complejidad en el cálculo, ya que deben abandonarse ciertas hipótesis simplificadoras que se emplean en condiciones de operación normal.

En estrecha relación con estos mencionados desarrollos, y a raíz de distintos factores de

la actualidad de la tecnología nuclear, se postula extender el funcionamiento del código a nuevos combustibles, denominados ATF (*Advanced Technology Fuels*) o combustibles de tecnología avanzada. Estos combustibles son construidos con nuevos materiales a los que se incluye una mejora sustancial desde el punto de vista de especificaciones relacionadas tanto a la seguridad como a la sustentabilidad.

Los materiales ATF son parte de los futuros reactores nucleares, aquellos de los denominados de Generación III+ y Generación IV, que buscan, además de aumentar la eficiencia energética, promover la sustentabilidad de la energía nuclear, mejorando siempre la seguridad de la misma. En este sentido surge una de las primeras definiciones de materiales ATF, aquellos que aumentan el rango de seguridad de los reactores que los utilizan, sea porque sus propiedades permiten trabajar en condiciones menos demandantes, sea porque dado un hipotético accidente, estos materiales proveen de mejores respuestas ante solición extrema.

Debido a este escenario futuro, desarrollar una librería de materiales ATF para un código combustible como DIONISIO es un paso necesario y fundamental desde el punto de vista tecnológico, ya que aunque la Argentina no posea desarrollos de combustibles ATF actualmente, es de esperar que en un futuro los tenga, si es que desea mantenerse como una de las pocas naciones que producen tecnología nuclear del planeta.

Para la validación del módulo se simularon las condiciones de diferentes experimentos que reproducen en laboratorio situaciones tanto de operación normal como de accidente tipo LOCA, cuyos datos están publicados en la literatura específica. Estos resultados dieron lugar a presentaciones en congresos y publicaciones tanto nacionales como internacionales, y a participaciones en proyectos internacionales de intercomparación de códigos. Tal es el caso del programa ATF-TS (*Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels*), organizado por el OIEA, durante los años 2020-24. En el último capítulo de esta tesis, además de los resultados obtenidos por DIONISIO sobre esos experimentos, se presentan algunos de los resultados que fueron incluidos en el reporte final de ATF-TS, en donde las predicciones del código se comparan con resultados experimentales y con los provistos por el resto de los participantes del proyecto. Allí se comprueba el buen desempeño del código utilizando nuevos materiales tanto en condiciones normales como en respuesta a hipotéticos casos de accidente.

Abstract

The Codes and Models Section of the Nuclear Fuels Management has been developing a fuel code called DIONISIO, whose purpose is to simulate the behavior of a typical fuel rod of a nuclear power reactor. The code currently has more than 70 interconnected models that address most of the phenomena that occur under irradiation under normal reactor operating conditions. Some of the phenomena that the code predicts are the thermal and mechanical behavior, the release of fission gases, the swelling and densification of the tablets, the thermohydraulic conditions of the channel surrounding the rod, the growth of the oxide layer, among others. Likewise, the code has a module to simulate the behavior of plate-type fuels, a design that is commonly used in research reactors.

Likewise, and through another doctoral work completed in 2021, the code's prediction range has been extended to accident scenarios, particularly those caused by loss of coolant, called LOCA (Loss Of Coolant Accident). With this objective, several models were developed to describe the behavior of the cooling fluid in the power reactors, as well as those that take place in the fuel rod cladding, typically Zircaloy alloy, such as its oxidation and the consequent growth of different phases (ZrO_2 , α - Zr, β - Zr), at high temperatures, and the capture and release of hydrogen from the dissociation of water molecules from the coolant. Likewise, models were incorporated to describe the macroscopic mechanical deformation of the cladding under highly demanding conditions, like the *ballooning* and the possible catastrophic rupture (*burst*).

The development of this complex module involved, first, the separate development and evaluation of models to describe the different physical processes and, subsequently, their incorporation into the code as new particular subroutines, respecting the architecture, mode of execution and versatility of the rest of the code. The new accident module allows analyzing and quantifies the behavior of the coolant fluid, whether in single or double phase, evaluating at every moment the system pressure, the coolant flow and the vapor fraction in the different axial positions of the channel. It is noted that, in an accident context, the rapid variation experienced by the conditions to which the fuel rod is subjected gives rise to greater complexity in the calculation, since certain simplifying assumptions that are used in normal operating conditions must be abandoned.

In close relation to these aforementioned developments, and as a result of different factors in current nuclear technology, it is proposed to extend the operation of the code to new fuels, those called ATF (Advanced Technology Fuels). These fuels are built with novel materials or materials that include a substantial improvement from the point of

view of specifications related to both safety and sustainability.

ATF materials are part of future nuclear reactors, those called Generation III+ and Generation IV, which seek, in addition to increasing energy efficiency, to promote the sustainability of nuclear energy, always improving its safety. In this sense, one of the first definitions of ATF materials arises, any material that increase the safety range of the reactors that use them, either because their properties allow working in less demanding conditions, or because given a hypothetical accident, these materials provide better responses to extreme requests.

Due to this future scenario, developing an ATF materials library for a fuel code like DIONISIO is a necessary and fundamental step from a technological point of view, since although Argentina does not currently have ATF fuel developments, it is expected that in a next future will have them, if the focus is to remain be one of the few nations that produce nuclear technology on the planet.

To validate the module, different experiments that reproduce in the laboratory situations of both normal operation and LOCA-type accidents were simulated. These results gave rise to presentations at conferences and publications, both national and international, and allow the group to participate in an international project for intercomparison of codes, as is the case of the ATF-TS (Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels) program, organized by the IAEA, during the years 2020-24. In the last chapter of this thesis, in addition to the results obtained by DIONISIO on these experiments, some of the results to be included in the final ATF-TS report are presented, where the predictions of the code are compared with experimental results and with those provided by the rest of the project participants. There, the good performance of the code is checked using new materials both under normal conditions and in response to hypothetical accident cases.

Publicaciones y congresos

Publicaciones en revistas con referato

- 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, vol. 523, pp. 121-134, sep. 2019.
- E. Goldberg, M. E. Cazado, M. E. Loza Peralta, y A. Soba, «New module for simulating experiments without irradiation included in the DIONISIO 3.0 code», Nuclear Engineering and Design, vol. 374, p. 111067, abr. 2021.
- M. E. Loza Peralta, M. E. Gonzalez, E. Villarino, E. A. Bea, y A. Soba, «Thorium cycle models into DIONISIO code: species, thermomechanical behaviour and fission gas release», Journal of Nuclear Materials, vol. 557, p. 153279, sep. 2021.
- M. E. Loza Peralta y A. Soba, «ATF library included in DIONISIO code: materials and validations», (In preparation to be send to Nuclear Engineering and Design)

Congresos

Organismo Internacional de Energía Atómica

- E. Goldberg, F. Rotea, M. E. Loza Peralta, M. E. Cazado, y A. Soba, «Simulation of PHWR fuel rods using DIONISIO: normal, accident and storage conditions». Technical Meeting on Advances in Fuel Design, Manufacturing and Examinations for Pressurized Heavy Water Reactors, OIEA, Buenos Aires, 4 al 8 de Noviembre 2024.

Congreso Argentino de Mecánica Computacional

- M. E. Loza Peralta, M. E. González, E. Bea, y A. Soba, «Modelado de Liberación de Gases de Fisión para Combustibles de Óxidos Mixtos de Torio y Uranio», Mecánica Computacional, vol. 38, n.º 10, Art. n.º 10, nov. 2021.
- M. E. Loza Peralta, M. L. Lemes Lapasta, E. A. Bea, y A. Soba, «Modelado de Materiales para Combustibles Tecnología Avanzada», Mecánica Computacional, vol. 39, n.º 32, Art. n.º 32, nov. 2022.
- M. E. Loza Peralta, E. Goldberg, M. R. Lemes Lapasta, y A. Soba, «Modelado de Pastillas Dopadas para Combustibles de Tecnología Avanzada», Mecánica Computacional, vol. 40, n.º 34, Art. n.º 34, nov. 2023.

- M. E. Loza Peralta, A. Soba, «Modelado de aleaciones de Zr recubiertas con Cr para combustibles de tecnología avanzada». nov. 2024.

Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear

- M. E. Loza Peralta, M. L. Lemes Lapasta, y A. Soba, «Avances del código DIONISIO en la simulación de materiales para combustibles de tecnología avanzada», XLVI Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, 19 al 22 de Diciembre 2022, Ciudad Autónoma de Buenos Aires, Argentina.
- M. E. Loza Peralta, M. L. Lemes Lapasta, y A. Soba, «Inclusion de modelos para combustibles ATF en el código DIONISIO: pastillas de UO₂ dopadas con Cr₂O₃», XLVII Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, 27 de Noviembre al 1 de Diciembre 2023, Ciudad Autónoma de Buenos Aires, Argentina.
- M. E. Loza Peralta, y A. Soba, «Inclusión de modelos para vainas recubiertas con Cromo en el código DIONISIO». XLVIII Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, AATN 2024, Ciudad Autónoma de Buenos Aires, Argentina, Nov. 2024.

Asociación Argentina de Materiales

- M. E. Loza Peralta, M. L. Lemes Lapasta, y A. Soba, «Simulación de Materiales para vainas de combustibles nucleares de tecnología avanzada», SAM CONAMET 20 Congreso Internacional de Metalurgia y Materiales, 2 al 6 de Mayo 2022, Mar del Plata, Argentina.
- M. E. Loza Peralta, M. L. Lemes Lapasta, y A. Soba, «Simulación de pastillas de UO₂ dopadas con Cr₂O₃ para combustibles nucleares de tecnología avanzada», 8vo Encuentro de jóvenes investigadores en Ciencia y Tecnología de Materiales, 7 y 8 de Noviembre 2023, Córdoba, Argentina.
- M. E. Loza Peralta, y A. Soba, «Simulación de vainas recubiertas para combustibles ATF». SAM CONAMET 2024. XXII Congreso Internacional de Metalurgia y Materiales. 6 al 9 de Agosto 2024. Buenos Aires Argentina.

Informes Técnicos

- M. E. Loza Peralta, y A. Soba, «Development of ATF models library within DIONISIO 3.0 code, to work under normal and accident conditions: Work Task 2 report». ATF-TS project, OIEA, 2024.

- M. E. Loza Peralta, y A. Soba, «Development of ATF models library within DIONISIO 3.0 code, to work under normal and accident conditions: Work Task 3 report».ATF-TS project, OIEA, 2024.

Abreviaturas

ACC	<i>Accumulator Cooling Circuit</i>
ACTOF	<i>Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance</i>
ADSR	<i>Accelerator Driven Subcritical Reactor</i>
AEKI	<i>Atomic Energy Research Institute</i>
AIS	<i>Análisis de Incerteza y Sensibilidad</i>
ASG	<i>Análisis de Sensibilidad Global</i>
ATF	<i>Accident Tolerant Fuel o Advanced Technology Fuel</i>
ATF-TS	<i>Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels</i>
BDBA	<i>Beyond-Design-Basis Accident</i>
BR-2	<i>Belgian Reactor 2</i>
BWR	<i>Boiling Water Reactor</i>
CANDU	<i>Canada Deuterium Uranium Reactor</i>
CAREM	<i>Central Argentina de Elementos Modulares</i>
CC	<i>Condiciones de Contorno</i>
CDF	<i>Cumulative distribution function</i>
CNEA	<i>Comisión Nacional de Energía Atómica</i>
CVD	<i>Chemical Vapour Deposition</i>
CVI	<i>Chemical Vapour Infiltration</i>
DAKOTA	<i>Design Analysis Kit for Optimization and Terascale Applications</i>
DBA	<i>Design-Basis Accident</i>
DEC	<i>Design Extension Conditions</i>
DOE	<i>Department of Energy</i>
EC	<i>Elemento Combustible</i>
ECCS	<i>Emergency core cooling system</i>
ECR	<i>Equivalent Clad Reacted</i>
EECC	<i>Elementos Combustibles</i>
FGR	<i>Fission Gas Release</i>
FUMAC	<i>Fuel Modelling in Accident Conditions</i>
FUMEX	<i>Fuel Modelling at Extended Burnup</i>
GCCN	<i>Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear</i>
GFR	<i>Gas Fast Reactor</i>
GIF	<i>Genaration IV International Forum</i>
HM	<i>Heavy Metal</i>
HPIS	<i>High Pressure Injection System</i>
HRM	<i>Heterogeneous Response Method</i>

IAEA	<i>International Atomic Energy Agency</i>
IFA	<i>Instrumented Fuel Assembly</i>
JRC-ITU	<i>Joint Research Center-Institute for Transuranium Elements</i>
KIT	<i>Karlsruhe Institute of Technology</i>
KWO	<i>Obrigheim Nuclear Power Plant</i>
LBLOCA	<i>Large Break Loss Of Coolant Accident</i>
LFR	<i>Lead-cooled Fast Reactor</i>
LOCA	<i>Loss Of Coolant Accident</i>
LPIS	<i>Low Pressure Injection System</i>
LTC	<i>Long-Term Cooling</i>
LWBR	<i>Light Water Breeder Reactor</i>
LWR	<i>Light Water Reactor</i>
MCO	<i>Maximum Cladding Oxidation</i>
MHG	<i>Maximum Hydrogen Generation</i>
MO	<i>Microscopía óptica</i>
MOX	<i>Mixed Oxide Fuel</i>
MSR	<i>Molten Salt Reactor</i>
NITE	<i>Nano Infiltration and Transient Eutectic</i>
OIEA	<i>Organismo Internacional de Energía Atómica</i>
OPZCR	<i>Cr-coated Optimized ZIRLO</i>
PCC	<i>partial correlation coefficient</i>
PCMI	<i>Pellet-Cladding Mechanical Interaction</i>
PCT	<i>Peak Cladding Temperature</i>
pdf	<i>probability density function</i>
PRCC	<i>partial rank correlation coefficient</i>
PVD	<i>Physichal Vapour Deposition</i>
PWR	<i>Presurized Water Reactor</i>
RCC	<i>rank correlation coefficient</i>
SCC	<i>simple correlation coefficients</i>
SCIP	<i>Studsвик Cladding Integrity Project</i>
SCWR	<i>Supercritical Water Reactor</i>
SEM	<i>Scanning Electron Microscope</i>
SET	<i>Separated Effect Test</i>
SFR	<i>Sodium Fast Reactor</i>
SNL	<i>Sandia National Laboratory</i>
TRISO	<i>Tri-structural Isotropic particle fuel</i>
TSD	<i>Thermal Spray Deposition</i>
USNRC	<i>United States Nuclear Regulatory Commission</i>
VHTR	<i>Very High Temperature Reactor</i>

VVER (o
WWER) *Water-Water Energetic Reactor*
Zry ZIRCALOY

Índice

1. Introducción	15
1.1. Combustibles de tecnología avanzada (ATF)	15
1.2. El código DIONISIO	16
1.3. Reactores Avanzados	18
1.4. Proyecto ATF-TS	20
1.5. Objetivo y contenido de la tesis	21
Referencias	22
2. Materiales para ATF	26
2.1. Límites de seguridad de un EC en un reactor de Potencia	26
2.2. Requerimientos generales de un ATF	31
2.3. Materiales para pastillas ATF	34
2.3.1. Óxidos mixtos de Torio	34
2.3.2. Dióxido de Uranio dopado con óxido de Cromo	36
2.4. Materiales para Vainas ATF	37
2.4.1. FeCrAl	37
2.4.2. Aleaciones de Zirconio recubiertas con Cromo	39
2.4.3. Zirconio - 1 % Niobio	40
2.4.4. Compuesto de matriz y fibra de Carburo de Silicio (SiC/SiC)	42
Referencias	43
3. Modelos de materiales para pastillas	46
3.1. Modelo original de liberación de gases de fisión en óxidos de uranio	46
3.2. Óxidos mixtos de Torio	48
3.2.1. Modelado neutrónico	48
3.2.2. Propiedades termomecánicas	56
3.3. Dióxido de Uranio dopado con óxido de Cromo	57
Referencias	58
4. Modelos de materiales para vainas	60
4.1. Modelos de oxidación de la vaina	60
4.1.1. Producción de hidrógeno gaseoso en aleaciones ATF	60
4.2. FeCrAl	61
4.2.1. Modelos de propiedades termomecánicas	61
4.2.2. Criterio de <i>burst</i>	63
4.2.3. Modelos de propiedades termofísicas	64

4.2.4.	Modelo de Oxidación en Condiciones Normales de Operación	65
4.2.5.	Modelo de Oxidación a Alta Temperatura	66
4.3.	Aleaciones de Zirconio recubiertas con Cromo	66
4.3.1.	Modelos termomecánicos y termofísicos	66
4.3.2.	Modelo de Oxidación a Alta Temperatura	70
4.4.	Zirconio - 1 % Niobio	70
4.4.1.	Propiedades termomecánicas y termofísicas	70
4.4.2.	Modelo de termofluencia	70
4.4.3.	Criterios de <i>burst</i>	71
	Referencias	73
5.	Validación	75
5.1.	Validación con experimentos de pastillas de óxidos mixtos de Torio	75
5.1.1.	Experimentos	75
5.1.2.	Simulaciones	76
5.2.	Validación con experimentos de pastillas de dióxidos de Uranio dopado con óxido de Cromo	78
5.2.1.	Experimento IFA 716	78
5.2.2.	Experimento IFA 677	79
5.2.3.	Experimento SCIP II	82
5.3.	Validación de vainas de FeCrAl: <i>benchmarks</i> de intercomparación de códi- gos y experimentos	83
5.3.1.	<i>Benchmark</i> para condiciones normales de operación	83
5.3.2.	Experimentos de fisura sin irradiación	85
5.3.3.	QUENCH-19: Experimento termohidráulico sin irradiación	88
5.4.	Aleaciones de Zirconio recubiertas con Cromo	89
5.4.1.	OPZCR: Experimentos de fisura sin irradiación	89
5.4.2.	CODEX: Experimento termohidráulico sin irradiación	90
	Referencias	91
6.	Estudios de Sensibilidad e Incerteza	93
6.1.	Experimentos de barras completas: Los casos IFA-650-x	93
6.1.1.	IFA-650-9	95
6.1.2.	IFA-650-10	97
6.1.3.	IFA-650-11	100
6.2.	Análisis de incerteza y sensibilidad	102
6.2.1.	Análisis de incerteza: método de propagación de la incerteza de entrada	103
6.2.2.	Análisis de sensibilidad: método de análisis de sensibilidad global .	105
6.2.3.	El código Dakota	106

6.2.4. Parámetros de entrada	107
6.2.5. Resultados en DIONISIO	108
Referencias	114
7. Conclusiones y trabajo a futuro	116
A. Apéndice	119

1. Introducción

1.1. Combustibles de tecnología avanzada (ATF)

En concordancia con el aumento de permanencia de los combustibles dentro de reactores del tipo PWR, que produce el denominado alto quemado [1-4], desde hace unas décadas la industria nuclear busca diseñar nuevos reactores nucleares de mayor eficiencia termodinámica, así como con mayor seguridad de funcionamiento. Estos nuevos reactores, denominados de Generación IV [5] requieren elementos combustibles (EECC) más seguros, diseñados en base a nuevos materiales que mantengan la integridad de dichos combustibles durante el mayor tiempo posible frente a un evento de accidente. De esta forma, estos nuevos materiales permiten que los sistemas de seguridad de un reactor nuclear tengan mayor tiempo para activarse en dichos casos y así evitar accidentes severos en el núcleo del reactor [6]. Estos nuevos materiales dieron lugar a un nuevo concepto de combustibles denominados de tecnología avanzada o combustibles tolerantes a accidentes (ATF, del inglés *Accident Tolerant Fuel* o *Advanced Technology Fuel*) [7, 8].

Por el momento, se destinan a reactores de agua presurizada (PWR) y presentan mejores desempeños en cuanto a su comportamiento termomecánico y termoquímico en comparación con los combustibles tradicionales diseñados con Zircaloy (Zry) y UO_2 . Una de sus características más interesantes, es la de ser diseñados buscando un desempeño optimizado en casos de accidente en el reactor, especialmente los accidentes que implican pérdida de refrigerante (tipo LOCA del inglés *Loss of Coolant Accident*) [8, 9]. Es así que la integridad estructural del combustible se mantendrá por mucho más tiempo y se evitará que el material radioactivo tenga contacto con el refrigerante.

Entre los materiales para la vaina pensados para desarrollar estos combustibles, se encuentran nuevas aleaciones de Zry [10-15], aleaciones de acero (FeCrAl) [16-19], materiales refractarios [20-22] y compuestos de carburos de silicio [23-26]. Por otro lado, los materiales físis propiamente dichos pertenecen a dos grupos principalmente, los óxidos de Uranio y/o Plutonio y Torio por un lado [27-31], y las llamadas aleaciones de alta densidad, como los combustibles metálicos, los nitruros, los siliciuros y los carburos [32-38].

Cabe aclarar que la bibliografía listada en el párrafo anterior, no agota la cantidad de estudios experimentales y numéricos realizados para cada tipo de material, pero ofrece una gran variedad de datos que permiten modelar el comportamiento de cada uno de esos sistemas con gran eficacia. Si bien la lista no es exhaustiva, claramente se limitará el alcance de la tesis a los materiales que sean estudiados en los proyectos en los que nuestro grupo se encuentra involucrado, especialmente sobre aquellos con los que contemos con mayor cantidad de datos experimentales y modelos numéricos para comparar.

1.2. El código DIONISIO

La Sección Códigos y Modelos perteneciente a la Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear (GCCN) de la CNEA ha desarrollado un código denominado DIONISIO que en forma genérica 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 experimentación, tanto en condiciones de operación normal como de accidente. Aunando todas sus características DIONISIO es un código multidimensional, ya que posee modelos uni, bi y tridimensionales acoplados entre sí.

Este código ha sido seleccionado para participar, como único representante de la Argentina, en proyectos internacionales destinados a la inter comparación y validación de códigos de simulación de combustibles de potencia, patrocinados por el Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA). Uno de ellos fue la tercera edición del proyecto *Fuel Modelling at Extended Burnup* (FUMEX III) [39]. Esta tarea se cumplió mediante el contrato *IAEA Research Contract N°15177*, que abarcó entre 2008 y 2012. Posteriormente el grupo de investigación participó en otro proyecto similar, *Fuel Modelling in Accident Conditions* (FUMAC) que se inició en 2014 y finalizó en 2018, en este caso bajo el contrato *IAEA Research Contract N°18536* [40].

Así mismo, el sector responde a los requerimientos de distintos grupos de diseño de combustibles de la GCCN - CNEA. En particular, en relación con el proyecto CAREM (Central Argentina de Elementos Modulares) [41], se han realizado cálculos predictivos del comportamiento de su combustible, contribuyendo al diseño del mismo. Asimismo, se han llevado a cabo trabajos de índole similar en el marco del proyecto de reactor de investigación RA-10 [42].

Existen numerosas publicaciones y presentaciones a congresos en el contexto internacional, referidas al código y los modelos en los que se basa, que avalan sus resultados[43-50].

En su versión destinada a reactores de potencia, 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. Este pequeño dominio es resuelto en distintas posiciones axiales de una barra combustible completa (ver Figura 1.1), respondiendo a las condiciones de contorno locales de cada segmento en el reactor. En efecto, a lo largo de una barra varía no solo el flujo neutrónico al que esta sometida sino también las condiciones termohidráulicas. Este modo de simular, prácticamente estandarizado en la gran mayoría de códigos de combustible responde a una dimensionalidad $XD+1/2$, $X=2,3$, y la fracción representa la discretización longitudinal de la barra [49, 51].

Por otro lado, se ha desarrollado e incorporado en el código un módulo de accidente [43, 50] que intenta alcanzar diferentes objetivos. Uno de ellos es extender el rango de predicción del código, diseñado originalmente para describir fenómenos que ocurren en condiciones normales de operación, a escenarios con fenómenos más complejos como son los de accidente, en particular los provocados por la pérdida de refrigerante. Otro de los

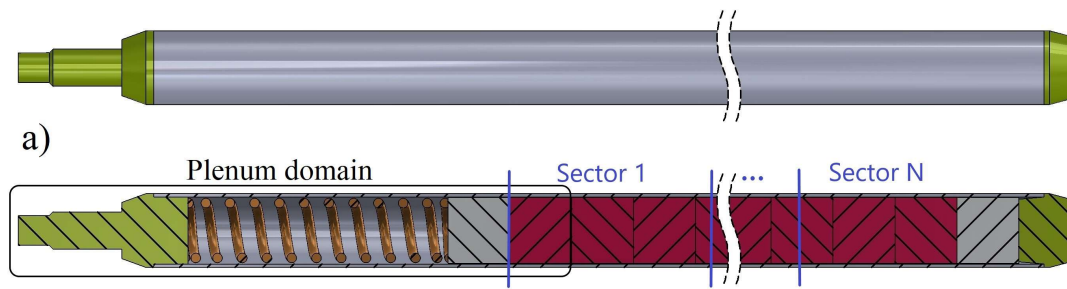


Figura 1.1: División del dominio en sectores a diferentes alturas

objetivos del trabajo, y el más ambicioso, es disponer de un cálculo autónomo mediante un código específico de combustible como es DIONISIO, prescindiendo del aporte de un código termohidráulico externo para la evaluación de las condiciones en el refrigerante durante un LOCA. En este sentido se describe el comportamiento termohidráulico simplificado dentro del sistema canal-vaina-refrigerante, y obtener las condiciones de contorno necesarias para analizar y cuantificar el comportamiento térmico de la barra combustible durante condiciones de accidente. Desde el punto de vista computacional, el desarrollo de este nuevo módulo presentó grandes desafíos. Se tuvo presente la importancia de crear herramientas de simulación precisas teniendo en cuenta las rápidas variaciones y las condiciones extremas experimentadas por la barra combustible durante este tipo de accidente. Estos rápidos transitorios son precisamente la causa de algunas de las dificultades más desafiantes encontradas en las simulaciones, ya que las condiciones generales del sistema están definitivamente lejos del equilibrio y los modelos previamente incluidos en el código no las tenían contempladas.

El módulo incorporó diferentes modelos que dependen de un gran número de parámetros y variables que intervienen en la evolución de la temperatura, considerando, no solo las diferentes posiciones axiales de la barra, sino también en cada instante durante un transitorio rápido como el que sucede durante un accidente tipo LOCA (ver Figura 1.2). Los modelos incorporados permiten describir: el calor acumulado en el combustible y su disipación, la temperatura exterior de la vaina (y del combustible en su conjunto), presión interna, temperatura del fluido en el canal refrigerante, regímenes de transferencia de calor, flujo de calor crítico, fracciones de vapor en volumen y en masa dentro del canal, caída de presión en diferentes posiciones de la barra y disminución de caudal del refrigerante, entre otros. El módulo también considera la evolución mecánica del sistema incorporando diferentes modelos para cuantificar el crecimiento de nuevas fases en el interior de la vaina y el crecimiento de óxido a alta temperatura en la región exterior en contacto con el refrigerante, aplicable a distintas aleaciones de zirconio, que permiten describir y cuantificar la deformación de la vaina, así como los instantes y posiciones axiales de los fenómenos de *ballooning* y *burst* a través de la incorporación de los modelos de creep y deformación a alta temperatura[43]. El modelo de captura y liberación de hidrógeno adoptado explica bien las principales características de este fenómeno: considera las etapas iniciales del pro-

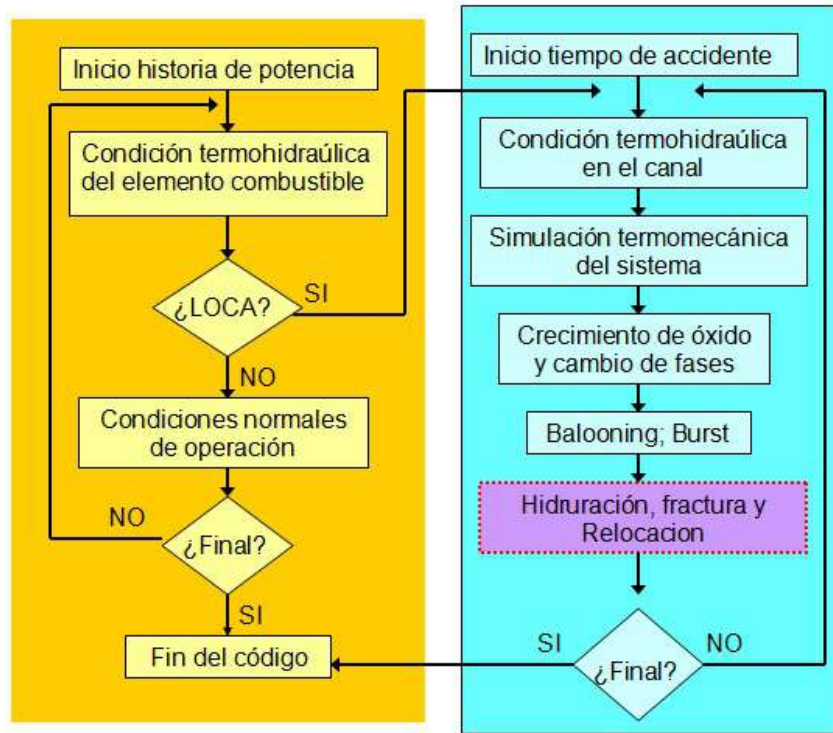


Figura 1.2: Esquema de incorporación del modelo de hidrógeno dentro del módulo de accidente en el código DIONISIO: en celeste, el módulo de accidente y las subrutinas que resuelven cada problema físico incorporado.

ceso con un aumento continuo de la concentración de hidrógeno en Zry, y una posterior etapa donde ocurre una paulatina liberación de hidrógeno con una disminución lenta de su concentración en el metal. Describe el aumento del límite de solubilidad con el aumento de la temperatura y la disminución del tiempo necesario para alcanzarlo[52].

El módulo de accidente ha sido validado y verificado en diferentes experimentos de combustibles en condiciones de accidente LOCA, como así también en condiciones de operación normal dentro del reactor, lo que revela una buena versatilidad de los modelos incluidos. Los resultados de las simulaciones fueron evaluados en distintos escenarios de accidente y comparados con diferentes códigos específicos.

El nuevo módulo permite evaluar el comportamiento de una barra combustible compuesta por materiales avanzados en caso de accidente, mostrando las diferencias que presentan estos nuevos materiales frente a los tradicionales.

1.3. Reactores Avanzados

Debido a la creciente demanda energética a nivel mundial, impulsado por el crecimiento demográfico y la mejora de la calidad de vida, se prevé que las fuentes de energía nuclear aumenten su participación. Teniendo en cuenta esta perspectiva, pero también otros aspectos relacionados como ser la sustentabilidad, la mejora de la eficiencia y la seguridad, es que nace la iniciativa “Generation IV International Forum (GIF)”, establecido

IV Generación	ESPECTRO	REFRIGERANTE	TEMP(C°)	PRESION	COMBUSTIBLE	POTENCIA (MWe)	CICLO COMBUSTIBLE	USOS	FASE
GFR	Rápido	He	850	Alta 7Mpa	U-238/MOX	200/800 Depende del prototipo	Cerrado avanzado	Electricidad Hidrogeno	Viabilidad
LFR	Rápido	Pb-Bi	500-800	Baja 1 atm	U-238/MOX	20/600 Depende del prototipo	Cerrado avanzado	Electricidad Hidrogeno	Ejecución
MSR	Térmico o Rápido	T->Sal de fluoruro R->sal de fluoruro fundido	700-800	Baja	T->UO ₂ partículas TRISO R->UF ₄ en sal fundido en el refrigerante	100/1.300 Depende del prototipo	Cerrado avanzado	Electricidad Hidrogeno	Viabilidad
SFR	Rápido	Na	550	Baja 1 atm	U-238/MOX	50/1.200 Depende del prototipo	Cerrado avanzado	Electricidad	Ejecución
SCWR	Térmico o Rápido	H ₂ O	510-550	Muy alta 25MPa	UO ₂ /PuO ₂ /ThO ₂	1.000/1.700 Depende del prototipo	Cerrado (térmicos) Cerrado avanzado (rápidos)	Electricidad	Ejecución
VHTR	Térmico	He	1000	Baja 3-4MPa	UO ₂ /ThO ₂	600	Cerrado	Electricidad Hidrogeno	Ejecución

Figura 1.3: Tabla resumen de los reactores de la generación IV al año 2014.

en el año 2000 como respuesta a las perspectivas mencionadas. El proyecto ha seleccionado seis conceptos de reactores nucleares, denominados reactores de Generación IV, que cumplen con los requisitos de óptima seguridad y confiabilidad, eficiencia y competitividad económica, sustentabilidad (uso eficiente de las reservas de uranio y minimización de los residuos nucleares) y resistencia a la proliferación. Estos conceptos son el *Sodium Fast Reactor* (SFR), el *Lead-cooled Fast Reactor* (LFR), el *Gas Fast Reactor* (GFR), el *Supercritical Water Reactor* (SCWR) en sus versiones térmica y rápida, el *Very High Temperature Reactor* (VHTR) y el *Molten Salt Reactor* (MSR). En la Figura 1.3 se detallan las características principales de estos diseños [53, 54].

Los reactores de Generación IV no trabajan en el espectro neutrónico térmico que presentan los hasta ahora conocidos “reactores nucleares”, y es que son capaces de trabajar sin moderar dichos neutrones, es decir, sin disminuir la velocidad de neutrones necesarios para producir la reacción en cadena. Lo que conlleva altas temperaturas de trabajo, y conseguir mayores eficiencias de trabajo. Otro de los grandes estudios de estos reactores se basa en el material que los refrigera, uno de los elementos más importantes dentro de un reactor. Utilizan refrigerantes como el helio, el plomo, el sodio, el agua supercrítica y sales fundidas.

Pero no son las únicas innovaciones que podemos encontrar sobre estos reactores, el gran cambio que presentan para la sostenibilidad, es el cumplimiento de la normativa de las emisiones de gases de efecto invernadero, el aprovechamiento a largo plazo del combustible nuclear, los ciclos de combustible cerrados, la minimización de residuos, y la transmutación de actínidos.

Como mejoras en seguridad y fiabilidad ofrecen nuevos diseños en el sistema del reactor más simples llamados pasivos, que permiten aumentar la seguridad del sistema de manera que se reduzcan los posibles accidentes, y disminuir los costes que se producen en la

operación y en la construcción. También presentan una clara resistencia a la proliferación, todo ello reforzando la seguridad de las instalaciones ya que se diseña el combustible de forma que no pueda ser utilizado para propósitos bélicos. Por otro lado, pretenden ser proyectos más rentables gracias al aumento que supone la vida útil de estos reactores.

Incluyen la novedad de que los diseños pueden no estar exclusivamente orientados a la generación de energía eléctrica en las centrales, sino que algunos pueden ser aplicables a otros campos como la generación de hidrógeno, grandes sistemas de transporte o, simplemente, generación de calor[54].

Todos estos factores requieren de nuevos diseños de elementos combustibles, también pensados para una mejora de la seguridad intrínseca de los reactores que los contienen, aumentando los rangos de exigencia termomecánica a los que serán sometidos, además de garantizar una mayor vida útil. Por otro lado, la inclusión dentro de los materiales físis de combustibles basados en el ciclo de torio, o combustibles MOX, se proponen como una mejora sustancial desde el punto de vista económico, ya que son más eficientes, además de preparar a los combustibles para cerrar el ciclo y aumentar de ese modo también, la rentabilidad de la energía nuclear en el futuro.

1.4. Proyecto ATF-TS

A nivel internacional, se están realizando esfuerzos para desarrollar herramientas de simulación de *performance* de combustibles que contengan materiales ATF, dentro de los cuales está el proyecto ATF-TS (*Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels*) del Organismo Internacional de Energía Atómica IAEA (2018)[55]. Este proyecto es la confluencia de dos proyectos previos denominados FUMAC y AC-TOF. El primero buscó analizar el comportamiento del combustible frente a eventos de accidente mediante la modelización; el segundo, proveyó la información sobre las diferentes opciones de materiales ATF a los distintos países miembros. De manera similar, el proyecto ATF-TS busca comprender y abordar diferentes factores que afectan el diseño, la fabricación y el comportamiento del combustible en operación, como así también, los materiales nucleares innovadores utilizados en la actualidad en reactores de potencia, con el fin de aumentar la disponibilidad tecnológica de materiales candidatos a ATF.

De este modo incluir una librería de nuevos materiales para ATF en DIONISIO, constituye un hito de avanzada dada la naturaleza de los desarrollos a nivel mundial de los mismos. Es verdad que muchos de los materiales propuestos para constituir EECC de reactores de cuarta generación y ATF, son “viejos” conocidos dentro de la industria nuclear. Este es el caso de los combustibles basados en óxido de Torio [56, 57] o las vainas constituidas por aleaciones de Zr-1 %Nb o Acero. En estos casos resulta más sencillo hallar bibliografía acerca de los mismos, así como datos experimentales para poder comparar los modelos desarrollados. Pero para las nuevas aleaciones propuestas, como las aleaciones de

hierro, cromo y aluminio (FeCrAl), los materiales recubiertos o en el caso de los combustibles, los compuestos dopados con Si u otro metal, el proyecto de la IAEA es una fuente inestimable de datos que resultan imprescindibles para este desarrollo, permitiendo trabajar en conjunto con equipos internacionales de primer nivel en la industria nuclear [8, 57].

1.5. Objetivo y contenido de la tesis

Si bien es verdad que en la actualidad, los materiales para combustibles nucleares continúan siendo los usuales en la industria desde prácticamente sus estadios iniciales, también es cierto que la tendencia a mejorar tanto la seguridad como el rendimiento de los reactores impulsa la continua búsqueda de nuevos materiales. Siendo DIONISIO un código combustible en continuo desarrollo y competitivo a nivel internacional, incluir dentro de su biblioteca de materiales, los destinados a ATF resulta de interés estratégico, en vistas del futuro de la industria nuclear.

Como ya expresamos en párrafos anteriores, la cantidad de materiales analizados y testeados en diferentes laboratorios del mundo es muy amplia, por lo que para elaborar una biblioteca inicial, se han seleccionado aquellos que el proyecto ATF-TS se ha delimitado a estudiar: el FeCrAl y el Zry recubierto por Cr para las vainas, y combustibles basados en óxidos de U dopados con Cr para el material físil. Se ha añadido para el caso de los combustibles propiamente dichos, el ciclo del torio, y a los materiales de la vaina, el Zr-1 %Nb, ambos por ser en realidad materiales ya utilizados en la industria en diferentes reactores comerciales, independientemente de que se los considere para formar parte de combustibles de reactores de las nuevas generaciones.

El trabajo aquí descrito presentó un doble desafío, ya que, además de requerir el desarrollo de modelos puntuales, tanto mecánicos como termoquímicos, de los nuevos materiales, dichos modelos debieron acoplarse al conjunto de un código combustible en producción, y adaptarse a funcionar en conjunto con la numerosa batería de modelos que ya posee el código. DIONISIO está escrito en FORTRAN 90, y su principal herramienta numérica está basada en el método de elementos finitos, con lo cual cada modelo, después de ser testado y validado en forma separada, debe acondicionarse a los requerimientos del código donde deben funcionar.

Esta tesis está compuesta por las siguientes secciones. En el capítulo 2, presentaremos una completa descripción de las características y propiedades de los materiales que se estudiaron en esta tesis, analizando las ventajas que presentan frente a los usuales de la industria. En el capítulo 3, se desarrollan los modelos incluidos en DIONISIO para los materiales físiles analizados (ThO_2 y $UO_2 + Cr$). En el cuarto capítulo se incluyen los modelos de materiales destinados a vaina combustibles (Zr-1 %Nb, FeCrAl y Zry recubierto con Cr). En ambos capítulos se presentan resultados de los modelos comparados

con datos experimentales, siempre que ello sea posible. En el capítulo 5 y 6 se presentan resultados generales de barras combustibles de nuevos materiales, analizadas por el código DIONISIO y comparada con los datos provistos por el proyecto ATF-TS, incluyendo análisis de incertezas y sensibilidad realizados en el contexto del mencionado proyecto. Finalmente, en el capítulo final, se presenta las conclusiones y se esbozan algunas líneas de trabajo futuro.

Referencias

- [1] 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.
- [2] M. Lemes, A. Soba y A. Denis. “An empirical formulation to describe the evolution of the high burnup structure”. *Journal of Nuclear Materials* 456 (2015), págs. 174-181.
- [3] A. Soba, M. Lemes, G. M. E., A. Denis y R. L. “Simulation of the behavior of nuclear fuel under high burnup conditions”. *Annals of Nuclear Energy* 70 (2014), págs. 147-156.
- [4] A. Soba, M. Lemes y A. Denis. *Simulation with DIONISIO 2.0 of a whole nuclear fuel rod under extended irradiation*. Inf. téc. IAEA-TECDOC-CD-1798. International Atomic Energy Agency (IAEA), 2016.
- [5] *IAEA-TECDOC-1434: Methodology for the Assessment of Innovative Nuclear Reactors and Fuel Cycles Report of Phase 1B (first part) of the International Project on Innovative Nuclear Reactors and Fuel Cycles (INPRO)*. TECDOC Series 1434. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004.
- [6] NEA. *Nuclear Fuel Behaviour in Loss-of-coolant Accident (LOCA) Conditions*. 6846. Paris: Nuclear Energy Agency, 2009.
- [7] K. Pasamehmetoglu et al. *State-of-the-Art Report on Light Water Reactor Accident-Tolerant Fuels*. Inf. téc. NEA-7317 INIS Reference Number: 50015394. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2018, pág. 372.
- [8] S. J. Zinkle, K. A. Terrani, J. C. Gehin, L. J. Ott y L. L. Snead. “Accident tolerant fuels for LWRs: A perspective”. *Journal of Nuclear Materials* 448.1 (2014), págs. 374-379. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.12.005.
- [9] NEA. *Nuclear Fuel Behaviour under Reactivity-initiated Accident (RIA) Conditions*. Paris: OECD Publishing, 2010.
- [10] K. Daub, R. Van Nieuwenhove y H. Nordin. “Investigation of the impact of coatings on corrosion and hydrogen uptake of Zircaloy-4”. *Journal of Nuclear Materials* 467 (2015), págs. 260-270. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.09.041.
- [11] H.-G. Kim, I.-H. Kim, Y.-I. Jung, D.-J. Park, J.-Y. Park e Y.-H. Koo. “Adhesion property and high-temperature oxidation behavior of Cr-coated Zircaloy-4 cladding tube prepared by 3D laser coating”. *Journal of Nuclear Materials* 465 (2015), págs. 531-539. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.06.030.
- [12] K. A. Terrani. “Accident tolerant fuel cladding development: Promise, status, and challenges”. *Journal of Nuclear Materials* 501 (2018), págs. 13-30. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2017.12.043.

- [13] K. A. Terrani, C. M. Parish, D. Shin y B. A. Pint. “Protection of zirconium by alumina- and chromia-forming iron alloys under high-temperature steam exposure”. *Journal of Nuclear Materials* 438.1 (2013), págs. 64-71. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.03.006.
- [14] J. Krejci, M. Sevecek y L. Cvrček. “Development of chromium and chromium nitride coated cladding for VVER reactors”. 2017.
- [15] J. Krejci, M. Sevecek, J. Kabátová, F. Manoch, J. Kočí, P. Bublíková, P. Halodova y H. Namburi. “Experimental behavior of chromium-based coatings”. Prague, Czech Republic, 2018.
- [16] C. Tang, M. Steinbrück, M. Große, A. Jianu, A. Weisenburger y H. Seifert. “High-temperature oxidation behavior of Kanthal APM and D alloys in steam”. 2016.
- [17] K. Sakamoto, M. Hirai, S. Ukai, A. Kimura, A. Yamaji, K. Kusagaya, T. Kondo y S. Yamashita. “Overview of Japanese development of accident tolerant FeCrAl-ODS fuel claddings for BWRs”. *Proceedings of 2017 Water Reactor Fuel Performance Meeting (WRFPM 2017)*. Jeju, Korea, 2017.
- [18] R. Stachowski, R. Rebak, W. Gassmann y J. Williams. “Progress of GE development of accident tolerant fuel FeCrAl cladding”. INIS Reference Number: 49101093. United States: American Nuclear Society - ANS, 2016.
- [19] S. Kato, T. Furukawa, S. Ohtsuka, Y. Yano, T. Inoue, T. Kaito, A. Kimura, T. Torimaru, S. Hayashi y S. Ukai. “R&D of ODS ferritic steel cladding for maintaining fuel integrity at accident condition (3)”. 2017.
- [20] G. Liu, G. J. Zhang, F. Jiang, X. D. Ding, Y. J. Sun, J. Sun y E. Ma. “Nanostructured high-strength molybdenum alloys with unprecedented tensile ductility”. *Nature Materials* 12.4 (2013). Number: 4 Publisher: Nature Publishing Group, págs. 344-350. DOI: 10.1038/nmat3544.
- [21] S. Nishikawa, H. Fujii, Y. Tsuchiuchi, M. Novo Sanjurjo y J. M. Alonso. “J-alloyTM, advanced PWR fuel cladding material; Program of J-alloyTM development”. Florida, 2010.
- [22] M. Todosow. *Preliminary Scoping Analyses of Impacts of SS316, and Zr₄ Coated Mo Cladding using TRITON code*. Brookhaven National Laboratory letter report. 2016.
- [23] K. Kakiuchi, K. Okonogi, M. Uchihashi, M. Ukai, F. Sebe, Y. Takeuchi, T. Ogawa, H. Matsumiya y S. Suyama. “Progress on ATF development of SiC for LWR”. American Nuclear Society - ANS; La Grange Park, IL (United States), 2016.
- [24] Toshiba. “SiC reactor core material”. 70.3 (2015).
- [25] K. A. Terrani, Y. Yang, Y. -. Kim, R. Rebak, H. M. Meyer y T. J. Gerczak. “Hydrothermal corrosion of SiC in LWR coolant environments in the absence of irradiation”. *Journal of Nuclear Materials* 465 (2015), págs. 488-498. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.06.019.
- [26] K. Yueh y K. A. Terrani. “Silicon carbide composite for light water reactor fuel assembly applications”. *Journal of Nuclear Materials* 448.1 (2014), págs. 380-388. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.12.004.
- [27] T. Cardinaels, K. Govers, B. Vos, S. Van den Berghe, M. Verwerft, L. de Tollenaere, G. Maier y C. Delafoy. “Chromia doped UO₂ fuel: Investigation of the lattice parameter”. *Journal of Nuclear Materials* 424.1 (2012), págs. 252-260. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2012.02.025.
- [28] C. Delafoy, V. I. Arimescu, R. M. Hengstler-Eger, H. Landskron, A. Moeckel y P. Bellanger. “ARE-VA Cr₂O₃-doped fuel: Increase in operational flexibility and licensing margins”. *Proceedings of the Top Fuel 2015 – Reactor Fuel Performance meeting*. Zurich, 2015.

- [29] D.-J. Kim, Y. W. Rhee, J. H. Kim, K. S. Kim, J. S. Oh, J. H. Yang, Y.-H. Koo y K.-W. Song. “Fabrication of micro-cell UO₂-Mo pellet with enhanced thermal conductivity”. *Journal of Nuclear Materials* 462 (2015), págs. 289-295. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.04.003.
- [30] J.-H. Yang, D.-J. Kim, K. S. Kim y Y.-H. Koo. “Thermo-physical property of micro-cell UO₂ pellets and high density composite pellets for accident tolerant fuel”. *IAEA Technical Meeting on Accident Tolerant Fuel Concepts for LWRs*. IAEA-TECDOC-1797 INIS Reference Number: 47080117. Oak Ridge National Lab, 2014.
- [31] J. Bischoff, P. Blanpain, J.-C. Brachet, C. Lorrette, A. Ambard, J. Strumpel y K. McKoy. “Development of fuels with enhanced accident tolerance”. *IAEA Technical Meeting on Accident Tolerant Fuel Concepts for LWRs*. Oak Ridge National Lab, 2014.
- [32] E. J. Lahoda y F. A. Boylan. *Development of LWR Fuels with Enhanced Accident Tolerance*. Inf. téc. DOE/NE-0000566. Westinghouse Electric Company, LLC, Cranberry Woods, PA (United States), 2015. DOI: 10.2172/1233713.
- [33] J. Malone, A. Totemeier, N. Shapiro y S. Vaidyanathan. “Lightbridge Corporation’s Advanced Metallic Fuel for Light Water Reactors”. *Nuclear Technology* 180.3 (2012). Publisher: American Nuclear Society, págs. 437-442. DOI: 10.13182/NT12-A15354. URL: <http://epubs.ans.org/?a=15354>.
- [34] P. D. R. V, O. H, O. T, N. R y N. ND. “Irradiation effects on actinide containing U-Pu-Zr metallic fuels at several burnups”. *Presentation material at 2012 ANS Annual Meeting*. ISSN: 0003-018x. Chicago, Illinois (USA): American Nuclear Society, 2012, págs. 231-234.
- [35] R. I. Sheldon y D. E. Peterson. “The U-Zr (Uranium-Zirconium) system”. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams* 10.2 (1989), págs. 165-171. DOI: 10.1007/BF02881432.
- [36] J. T. White, A. T. Nelson, J. T. Dunwoody, D. D. Byler, D. J. Safarik y K. J. McClellan. “Thermophysical properties of U₃Si₂ to 1773K”. *Journal of Nuclear Materials* 464 (2015), págs. 275-280. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.04.031.
- [37] A. Nelson, J. White, D. Byler, J. Dunwoody, J. Valdez y K. McClellan. “Overview of properties and performance of uranium-silicide compounds for light water reactor applications”. *Transactions of the American Nuclear Society* 110 (2014), págs. 987-989.
- [38] J. Valery, X. Domingo, P. Landau, C. Alameda-Angulo, C. Pechard y V. Laloy. “Status on silicide fuel reprocessing at AREVA La Hague”. *Conference Proceedings of RRFM 2015*. Bucharest, Romania, 2015.
- [39] J. Killeen, E. Sartori y M. McGrath. “FUMEX-III: A new IAEA Coordinated Research Project on Fuel Modelling at Extended Burnup”. *Proceedings of the Water Reactor Fuel Performance Meeting - WRFPM / Top Fuel 2009*. Paris, France, 2009.
- [40] P. F. M. under Accident Conditions (FUMAC) patrocinado por la IAEA. *Después de ganar un IAEA’s Coordinated Research Project (CRP 18536/R0)/ Inclusion of accident conditions models in the DIONISIO 2.0 code*.
- [41] *Reactor argentino CAREM*. 2018. URL: <https://www.argentina.gob.ar/cnea/carem>.
- [42] *Reactor multipropósito RA-10*. 2018. URL: <https://www.argentina.gob.ar/cnea/ra10>.
- [43] 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. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2017.02.015.
- [44] A. Soba, A. Denis, M. Lemes y M. E. Gonzalez. “Modelado del comportamiento del combustible nuclear bajo irradiación mediante DIONISIO 2.0”. *Revista de la CNEA* 53/54 (2014).

- [45] 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).
- [46] 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* 374.1 (2008), págs. 32-43. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.06.020.
- [47] 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* 238.12 (2008), págs. 3292-3298. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2008.06.026.
- [48] A. Denis y A. Soba. “Simulation of pellet-cladding thermomechanical interaction and fission gas release”. *Nuclear Engineering and Design* 223.2 (2003), págs. 211-229. DOI: 10.1016/S0029-5493(02)00390-4.
- [49] 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. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2019.06.005.
- [50] M. Lemes, A. Denis y A. Soba. “Simulation of Nuclear Fuel Behavior in Accident Conditions With the DIONISIO Code”. *Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science* 5.2 (2019). DOI: 10.1115/1.4042705. URL: <https://doi.org/10.1115/1.4042705>.
- [51] R. L. Williamson, J. D. Hales, S. R. Novascone, M. R. Tonks, D. R. Gaston, C. J. Permann, D. Andrs y R. C. Martineau. “Multidimensional multiphysics simulation of nuclear fuel behavior”. *Journal of Nuclear Materials* 423.1 (2012), págs. 149-163. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2012.01.012.
- [52] M. Lemes. *Simulación de una barra combustible en condiciones de accidente tipo LOCA. Tesis de doctorado, Instituto Beninson, UNSAM, 2021.*
- [53] A. T. R. for Generation IV Nuclear Energy Systems. *US, DOE and the Generation IV International Forum, 2002.*
- [54] C. M. Moreno. *REACTORES NUCLEARES DE IV GENERACIÓ, Tesis de GRAU EN ENGINYERIA DE RECURSOS ENERGÈTICS I MINERS, UPC, 2017.*
- [55] *Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels (ATF-TS)*. Text. Publisher: IAEA. 2018. URL: <https://www.iaea.org/projects/crp/t12032>.
- [56] M. E. Loza Peralta, M. E. Gonzalez, E. Villarino, E. A. Bea y A. Soba. “Thorium cycle models into DIONISIO code: species, thermomechanical behaviour and fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* (2021), pág. 153279. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2021.153279.
- [57] I. A. E. Agency. *Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance (ACTOF)*. Publisher: IAEA. Vienna, 2020. URL: <https://www.iaea.org/publications/14691/analysis-of-options-and-experimental-examination-of-fuels-for-water-cooled-reactors-with-increased-accident-tolerance-actof>.

2. Materiales para ATF

2.1. Límites de seguridad de un EC en un reactor de Potencia

Un accidente tipo LOCA se produce por la pérdida total o parcial de líquido refrigerante en la vasija o en el circuito primario. Cuando esto sucede, el sistema primario pierde presión y en algunos casos los combustibles pueden quedar total o parcialmente descubiertos. Para terminar la fisión dentro del combustible, las barras de control caen por gravedad y se activan el sistema de refrigeración de emergencia del núcleo (ECCS), que en general posee agua con boro para asegurar el completo apagado de la reacción en cadena. El ECCS está compuesto por [1]:

- **Sistema de inyección de alta presión** (HPIS - *High Pressure Injection System*): Su función principal es proporcionar agua al núcleo en situaciones de emergencia en las que la presión dentro de la vasija del reactor se mantiene elevada (>10 MPa) por períodos prolongados. Esto ocurre en escenarios como rupturas en la línea de vapor o fugas de agua del circuito primario al secundario a través de un tubo dañado en el generador de vapor. Este sistema representa la primera línea de defensa del reactor, ya que puede operar incluso cuando la vasija sigue altamente presurizada.
- **Acumuladores del circuito de refrigeración** (ACC - *Accumulator Cooling Circuit*): Son depósitos pasivos que almacenan grandes volúmenes de agua borada y están presurizados con gas nitrógeno a aproximadamente 4.5 MPa. Se encuentran conectados a una línea de descarga en las ramas frías del reactor. Cuando la presión en la vasija del reactor desciende por debajo de los 4.5 MPa, la presión ejercida por el nitrógeno impulsa el agua hacia el circuito primario. Estos acumuladores están diseñados para actuar en emergencias donde la presión en el circuito primario disminuye de manera súbita, como en el caso de roturas en el propio circuito primario.
- **Sistema de inyección de baja presión** (LPIS - *Low Pressure Injection System*): Su propósito es suministrar grandes volúmenes de agua al circuito primario en caso de accidentes con roturas importantes, en los cuales la presión en el circuito primario de refrigerante desciende a niveles muy bajos (<3 MPa) [1].

Dependiendo del tipo de reactor y su diseño, un evento LOCA puede involucrar diversas condiciones físicas que dependen de la presión del sistema y del comportamiento del flujo del refrigerante. Durante el transitorio, el refrigerante puede encontrarse en una sola fase, ya sea líquida o de vapor, o en ambas fases simultáneamente, variando a lo largo de una determinada barra de combustible.

En el caso de un LBLOCA (*Large Break LOCA*) extremo, es decir, una rotura en doble guillotina en la rama fría del núcleo (ruptura completa de la tubería en dos segmentos

físicamente separados), el refrigerante presente en la vasija y la rama fría es expulsado violentamente a través de la fractura. La fase inicial del evento, caracterizada por una rápida despresurización y vaciado de la vasija (*blowdown*, 0-30 s), se debe a la ruptura en la rama fría del reactor, lo que provoca una drástica reducción de la presión del sistema. Una vez que la presión dentro de la vasija alcanza el nivel de saturación, el refrigerante se convierte en una mezcla bifásica de agua y vapor, lo que atenúa la reducción de presión debido a que el flujo de vapor que escapa por la fractura es menor que el de la fase líquida. En los primeros 10 s, se activan los HPIS, y en pocos segundos, la presión del primario alcanza el umbral de activación de los ACC, que junto con los HPIS inyectan agua en el núcleo. La caída de las barras de control detiene la reacción en cadena, quedando solo el calor residual del decaimiento gamma y el calor acumulado en las pastillas, el cual debe disiparse. A medida que la velocidad del fluido disminuye, la temperatura de la vaina se incrementa.

Con la activación de los primeros sistemas de enfriamiento de emergencia (ECCS), se genera un flujo ascendente de vapor en el *downcomer* que se dirige hacia la rotura, impidiendo el ingreso de la inyección de agua en la parte inferior del núcleo, fenómeno conocido como *bypass* del núcleo. Sin embargo, la continua fuga de vapor a través de la fractura reduce la presión hasta niveles que permiten el ingreso del refrigerante del LPIS, el cual inyecta grandes volúmenes de agua, llenando la parte inferior de la vasija. Esta etapa, denominada *refill*, dura aproximadamente 30-40 s. Una vez concluida, se inicia la reinundación del núcleo (*reflood*), que dura entre 40 y 250 s, elevando el nivel de agua en la vasija y permitiendo la refrigeración de las barras de combustible que pudieron haber quedado expuestas. Este enfriamiento genera la producción de vapor, que asciende en forma anular desde la parte inferior. Sin embargo, debido al calor residual en el combustible, la refrigeración no es completamente efectiva, provocando un incremento rápido en la temperatura de la vaina, que puede superar los 1000°C, lo que conlleva el posible *burst* de la vaina y la liberación de productos de fisión en el refrigerante.

En la Figura 2.1 se muestra la evolución de la temperatura máxima exterior de la vaina (*Peak Cladding Temperature* – PCT), la despresurización del sistema primario y la secuencia de las distintas fases (*blowdown*, *refill* y *reflood*) durante un LBLOCA.

Debido a las tensiones que actúan sobre el material, el rápido aumento de la temperatura puede llevar al Zircaloy a su rango de deformación plástica. Esta situación, combinada con la despresurización del sistema por debajo de la presión de llenado de la barra, puede dar lugar a deformaciones permanentes en el combustible. El accidente concluye cuando se establece un estado de refrigeración a largo plazo, con los dispositivos LPIS suministrando suficiente refrigerante para mantener el flujo dentro del núcleo mediante circulación natural. Aunque todo reactor dispone de sistemas de emergencia para mitigar los daños durante un accidente, en casos de accidentes severos, tras la activación inicial de los ECCS para enfriar los elementos combustibles, su efectividad puede verse temporalmente redu-

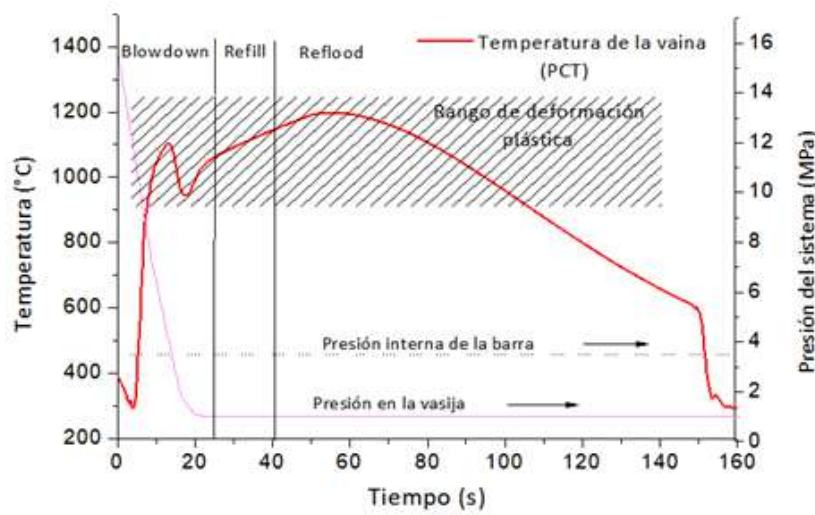


Figura 2.1: Evolución de la temperatura máxima de una vaina combustible, presión del sistema y diferentes fases de un LBLOCA [2]

cida. En tales circunstancias, una excursión térmica hacia temperaturas elevadas puede inducir múltiples fenómenos físicos, con el consiguiente riesgo de daños al combustible, el reactor y la central, lo que provocaría la interrupción de su operación, altos costos de reparación y, en los peores escenarios, un riesgo potencial para el medio ambiente.

Durante la operación normal del reactor (con temperaturas del refrigerante entre 200 y 300 °C), el zirconio de las vainas con estructura α -Zr(O) (fase α , de estructura hexagonal compacta) absorbe una pequeña cantidad de oxígeno, formando una delgada capa de óxido de zirconio (ZrO_2) en su superficie exterior, con una fracción en peso de oxígeno absorbido superior al 0.25 %. En este régimen de operación, la oxidación superficial de las vainas ocurre lentamente. Sin embargo, durante un LOCA, el aumento de la temperatura de las vainas y la transformación del refrigerante en vapor en un LWR aceleran la reacción de oxidación, lo que puede hacer que la capa de óxido superficial alcance un espesor considerable (ver Figura 2.2), consumiendo progresivamente la capa metálica subyacente.

En temperaturas elevadas, por encima de 1135K, a medida que la oxidación avanza sobre la porción metálica de la vaina, la difusión de oxígeno a través de la capa de óxido y de la fase α -Zr(O) conduce a la formación de la fase β -Zr(O), caracterizada por una estructura cúbica centrada en el cuerpo, dentro del material metálico.

El aumento de la temperatura en las barras durante un accidente, junto con la reducción de la presión del sistema y el incremento de la presión interna de la barra, puede provocar una deformación plástica de la vaina, adoptando la forma de un globo. Este fenómeno, conocido como englobamiento (*ballooning*), conlleva una reducción en la sección del canal de refrigeración, dificultando la disipación del calor (ver Figura 2.3).

En situaciones extremas, la deformación puede ser tan severa que las barras adyacentes lleguen a hacer contacto, provocando un bloqueo completo de los canales de refrigeración. El *ballooning* genera un volumen libre en el interior de la vaina, en el cual pueden depo-



Figura 2.2: Fenómeno de oxidación en un segmento de vaina combustible de Zry-4 expuesto a alta temperatura 1273 K durante 30 min en aire[3]



Figura 2.3: Segmento de barra de Zry antes y después del *ballooning* a 900 K[4]

sitarse fragmentos de pastillas que se desprenden de posiciones superiores, dando lugar al fenómeno de relocación de combustible (*relocation*). Esto conlleva un aumento local de la densidad lineal del material combustible, lo que incrementa la cantidad de calor remanente a disipar. Si la tensión experimentada por la vaina durante la deformación excede el límite de resistencia del material, se generan fisuras y el material puede estallar. Este fenómeno, denominado *burst*, representa un riesgo significativo, ya que permite la liberación de productos de fisión gaseosos o sólidos desde la barra hacia el circuito de refrigeración.

Otro fenómeno con impacto negativo en el comportamiento mecánico de la vaina es la absorción de hidrógeno y la consecuente formación de hidruros metálicos. Este proceso es una consecuencia directa de la rápida oxidación de la vaina a alta temperatura en presencia de agua de refrigeración, lo que libera hidrógeno. Una fracción significativa de este hidrógeno es retenida en solución sólida dentro de la estructura cristalina del zirconio, dependiendo de la presión del sistema y la temperatura de la vaina. Si se produce un descenso abrupto de la temperatura, como el generado por la activación del ECCS, el límite de solubilidad del hidrógeno se reduce drásticamente, provocando su precipitación en forma de hidruros. Estos compuestos son frágiles y su presencia debilita las propiedades mecánicas de la vaina, disminuyendo su tenacidad.

Existen regulaciones específicas en cada país respecto a los requisitos que deben cumplir las centrales nucleares para obtener su licenciamiento. Dichas normativas contemplan diversos escenarios de accidente y establecen la necesidad de sistemas de seguridad destinados a mitigar sus consecuencias.

De acuerdo con la USNRC (*United States Nuclear Regulatory Commission*) [5], todos los reactores nucleares que empleen pastillas de dióxido de uranio encapsuladas en vainas cilíndricas de Zircaloy deben contar con un ECCS, cuyo diseño debe permitir evaluar su capacidad de enfriamiento mediante simulaciones.

El sistema de emergencia debe estar preparado para enfrentar distintos tipos de acci-

dentes LOCA, considerando eventos de gran magnitud y diversas ubicaciones de roturas en el sistema.

Además, se establecen límites en relación con el nivel de deterioro aceptable en los materiales que componen el núcleo del reactor, los cuales son:

- Temperatura pico de la vaina, (*Peak Cladding Temperature* – PCT): Corresponde a la temperatura límite permitida. La vaina de los elementos combustibles no debe exceder los 1477 K.
- Oxidación máxima de la vaina, (*Maximum Cladding Oxidation* – MCO): La oxidación total no debe comprometer los límites de ductilidad de la vaina. Para su evaluación, se emplea el criterio de la fracción equivalente de la vaina reaccionada en la oxidación (*Equivalent Clad Reacted* – ECR), definido como la fracción de Zr consumido (respecto al espesor original de la vaina) si todo el oxígeno absorbido en la reacción se convirtiera localmente en dióxido de zirconio estequiométrico [6]. Este valor no debe superar el 17 %.
- Generación máxima de hidrógeno (*Maximum Hydrogen Generation* – MHG): La cantidad total de hidrógeno producida por las reacciones químicas entre la vaina y el refrigerante no debe sobrepasar el 1 % del hidrógeno que se generaría si todo el metal de las vainas de las barras combustibles reaccionara completamente (excluyendo el volumen del plenum).
- Geometría refrigerable (*Coolable Geometry*): Los cambios en la geometría del núcleo deben garantizar que el sistema de enfriamiento continúe operando dentro de los parámetros adecuados.
- Enfriamiento a largo plazo, (*Long-Term Cooling* – LTC): Luego de la activación del sistema de refrigeración de emergencia del núcleo, el sistema de enfriamiento a largo plazo debe garantizar que la temperatura del núcleo se mantenga en un nivel seguro, dado que el calor generado por el decaimiento radiactivo debe ser disipado de manera sostenida debido a la presencia de productos de fisión radiactivos de larga vida en el núcleo del reactor.

Los criterios de PCT y ECR aseguran la conservación de la integridad de la barra combustible, previniendo su fragilización en las zonas del núcleo con mayor demanda térmica durante un accidente LOCA. Los demás criterios están diseñados para preservar la integridad estructural del núcleo y garantizar su capacidad de refrigeración adecuada.

2.2. Requerimientos generales de un ATF

Las pastillas cerámicas de dióxido de uranio (UO_2) encapsuladas en una vaina de aleación de zirconio (Zr) han sido el combustible predominante en los reactores de agua

liviana (LWR) durante casi cinco décadas. Aunque el desempeño de este combustible ha sido satisfactorio y la tasa de fallas se mantiene en niveles bajos, diversos factores han llevado a considerar nuevas alternativas. En primer lugar, los eventos ocurridos en la planta de Fukushima-Daiichi en Japón en 2011 evidenciaron su vulnerabilidad inherente ante un apagón prolongado en la estación (*station blackout*). Si bien este tipo de incidente es extremadamente infrecuente, sus consecuencias pueden ser significativas tanto en términos económicos como ambientales.

Además, sin necesidad de llegar a escenarios extremos, la rentabilidad de las plantas nucleares puede mejorar si se incrementa la vida útil del combustible, es decir, si se eleva su quemado. En los últimos 30 años, la permanencia del combustible en el reactor ha aumentado de manera sostenida, pasando de un quemado de 30 MWd/kgU a 50-60 MWd/kgU. Sin embargo, este incremento conlleva mayores riesgos de fallas, lo que hace necesario mejorar los materiales utilizados en los EECC. Asimismo, los reactores de Generación IV se presentan como una alternativa para optimizar la eficiencia de los reactores como máquinas térmicas. Para ello, es fundamental ampliar los rangos de temperatura operativa, lo que implica desarrollar EECC más resistentes a condiciones extremas [7].

Finalmente, cualquier innovación debe ser económicamente viable para garantizar que la energía nuclear continúe siendo una fuente competitiva de energía limpia.

Un LWR moderno alberga aproximadamente 100 toneladas de combustible y 20 toneladas de vaina, las cuales en conjunto contienen una cantidad significativa de energía almacenada. Esta energía se libera, junto con el calor generado por la desintegración de radionucleidos de vida corta, cuando el reactor se apaga.

En caso de un accidente que interrumpa la refrigeración del combustible, su temperatura comenzará a aumentar. Alrededor de los 800°C, en la vaina de aleación de Zr se produce el *ballooning*, seguido del *burst*, lo que provoca la liberación de productos de fisión en el circuito de refrigeración primario. Cuando la temperatura alcanza aproximadamente 1200°C, la velocidad de la reacción exotérmica entre el Zr y el vapor se incrementa notablemente, generando grandes volúmenes de hidrógeno. Este fenómeno fue responsable de las explosiones que dañaron los edificios del reactor en Fukushima-Daiichi y contribuyeron a la liberación de radionucleidos al medio ambiente [5].

En términos generales, durante un *station blackout* prolongado, la capacidad de un combustible para resistir temperaturas elevadas determina su tolerancia a accidentes. Este concepto también se puede expresar en términos de "tiempo de afrontamiento" (*coping time*), que mide el período disponible para que los operadores restablezcan la refrigeración del reactor antes de que ocurran consecuencias graves. Si el *coping time* se extendiera de minutos a horas o días (o incluso indefinidamente), sería posible reducir significativamente los efectos de eventuales accidentes severos.

Desde la adopción del combustible de UO_2 con vaina de aleación de Zr en la década de 1970, las tasas de falla de las barras de combustible han disminuido en tres órdenes

de magnitud, convirtiéndose en eventos poco frecuentes [8]. Esto ha sido posible gracias a mejoras en el diseño de los EECC, en los materiales empleados, en la confiabilidad del proceso de fabricación, en la garantía de calidad y en los procedimientos operativos del reactor.

Se espera que el ATF exhiba un desempeño operativo sobresaliente desde su implementación, lo que demandará altos niveles de control en la fabricación y estrictos estándares de garantía de calidad del producto.

Las opciones alternativas de combustible tolerante a accidentes deben cumplir con las siguientes características [7]: (1) mantener un elevado nivel de seguridad y confiabilidad en condiciones normales de operación de los LWR; (2) reducir la dispersión de productos de fisión, retrasar la fusión del combustible y disminuir la velocidad de reacción con el vapor, así como la producción de hidrógeno en situaciones de accidente; y (3) ofrecer suficiente resistencia a temperaturas elevadas durante períodos prolongados para preservar la geometría y la integridad del EC. Según el informe de métricas de desempeño del Departamento de Energía de EE. UU. (*Department of Energy, DOE*), cualquier sistema ATF potencial debe ser evaluado en relación con todos los “regímenes de desempeño” pertinentes, tales como: viabilidad de fabricación y licenciamiento; desempeño en operación normal y eventos operacionales; accidentes postulados (accidentes base de diseño o *design-basis accident*, DBA); accidentes severos (accidentes más allá de la base de diseño, *beyond-design-basis accident*, BDBA); y facilidad de almacenamiento, transporte y disposición del combustible gastado. En términos generales, el propósito de emplear sistemas de combustible y vaina tolerantes a accidentes es incrementar los márgenes de seguridad al retrasar el deterioro severo del núcleo, permitiendo así disponer de más tiempo para implementar estrategias de mitigación en caso de accidente [9].

Los ATFs quedan definidos como cualquier combustible que puede tolerar un accidente severo en el reactor por un período mayor al que lo hace el sistema tradicional de UO_2 y Zry, siempre que mantenga o mejore su desempeño durante la operación normal y los transitorios operativos [10]. El verdadero desafío en la selección de estos nuevos materiales es mantener el compromiso entre las diferentes propiedades del material ya que es común que si mejoran algunas propiedades otras se ven comprometidas, lo que puede implicar un mayor costo en la fabricación del combustible o en la operación del reactor.

Entre las propiedades que se estudian están aquellas que aumentan la extracción del calor de la barra, como la conductividad térmica, las que disminuyen la interacción pastilla vaina, como la disminución de la resistencia mecánica de la pastilla, las que mantienen la integridad mecánica de la vaina, como la resistencia a la corrosión y las mejoras de las propiedades mecánicas, entre otras propiedades.

2.3. Materiales para pastillas ATF

2.3.1. Óxidos mixtos de Torio

El uso de combustibles nucleares a base de torio estuvo entre las primeras opciones propuestas en los primeros años del campo de la energía nuclear, y los proyectos de investigación desde los años cincuenta hasta mediados de los setenta demostraron su viabilidad para alimentar los principales conceptos de reactores que se estaban considerando en ese momento. Sin embargo, el descubrimiento de reservas adicionales de uranio, que tiene la ventaja del isótopo físil natural ^{235}U , permitió a la industria centrar la mayor parte de sus esfuerzos de desarrollo en los combustibles de uranio. Además, después de un fuerte aumento de los pedidos de nuevos reactores de potencia en los años sesenta y principios de los setenta, el crecimiento del parque de plantas nucleares se estancó considerablemente, lo que provocó cambios en las necesidades de demanda de uranio en todo el mundo. Esta tendencia desalentó aún más la continuación de proyectos relacionados con combustibles alternativos, que vieron un recorte global en muchas de sus líneas de investigación.

Sin embargo, aproximadamente a partir del año 2000, ha habido un resurgimiento de la investigación sobre nuevos combustibles nucleares, en consonancia con un renovado interés en la energía nuclear y el hecho de que la seguridad de los reactores podría aumentarse mediante el uso de combustibles con características avanzadas. Por tanto, el nuevo escenario de generación de energía nuclear debe incluir necesariamente nuevos diseños de reactores, así como combustibles tecnológicamente novedosos que permitan optimizar tanto la eficiencia operativa como la seguridad [11].

Una característica destacable de los combustibles de Torio es el ciclo que se produce entre los isótopos fértiles y físil. Dicho ciclo puede verse en la Figura 2.4. El Torio natural ^{232}Th absorbe un neutrón y pasa a ^{233}Th que se desintergra rápidamente a ^{233}Pa . Este último tiene una vida media de casi un mes y se desintegra a ^{233}U el cual es el producto físil. Cuando un neutrón impacta con este isótopo, este fisióna con un 95 % de probabilidad [12] y libera dos o tres neutrones que continúan el ciclo siendo absorbidos por otro ^{232}Th .

Algunas características del ThO_2 también favorecen su resistencia a la proliferación en comparación con el ciclo de UO_2 . Además del isótopo físil ^{233}U , el combustible de torio irradiado también contiene ^{232}U , que se desintegra por emisión α a ^{228}Th , iniciando una cadena de decaimiento que tiene varios emisores α y γ de considerable energía. Este hecho desincentiva la manipulación y procesamiento de este particular combustible, salvo que se utilicen instalaciones diseñadas de manera muy estricta, lo que constituye una barrera contra el desvío y uso del material con fines ilícitos. Además, la necesidad de mezclar ThO_2 con un isótopo físil, particularmente PuO_2 , conduce a la posibilidad de utilizando el material físil disponible en los programas de reducción de armas nucleares, lo que supondría un incentivo extra para su ejecución [13].

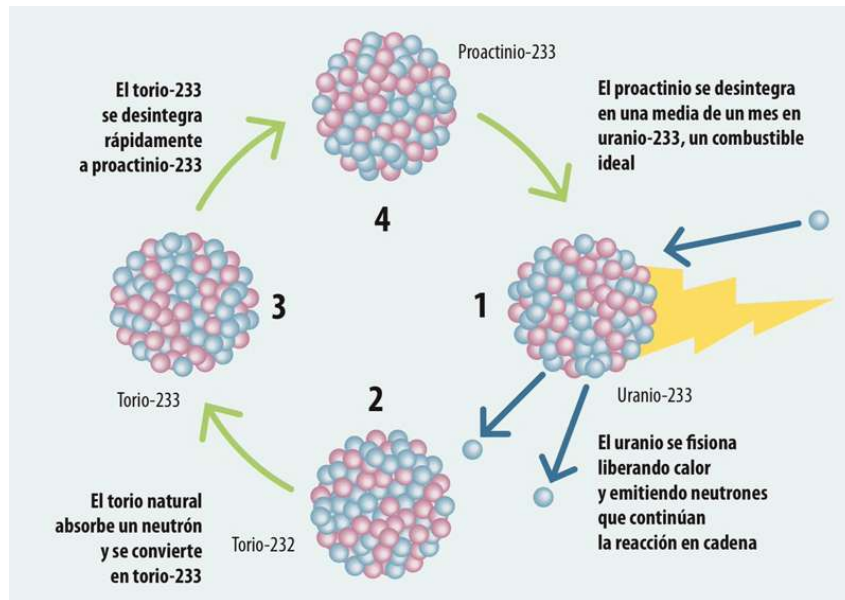


Figura 2.4: Ciclo del Torio [12]

El hecho de que el ^{235}U sea el único nucleido físil de origen natural significa que un ciclo de combustible nuclear basado en el torio, con su isótopo fértil ^{232}Th como especie reproductora, requeriría la adición de un nucleido físil para formar un combustible mixto. Esto guarda mucha analogía con el combustible MOX habitual compuesto de $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ que se quema en algunos reactores PWR como una fracción de su esquema de carga del núcleo por lotes de UO_2 .

En el caso del torio, la opción más sencilla es el uso de ThO_2 , que tiene propiedades térmicas y mecánicas similares a las del UO_2 , dada su estructura cristalina de fluorita, y combinarlo con plutonio para formar combustible $(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$ o cargar pastillas de ThO_2 en posiciones específicas del núcleo de un reactor alimentado con UO_2 [14]. Esta opción puede considerarse como una opción para ATF dado que la conductividad de la pastilla es mayor que la del combustible tradicional favoreciendo la extracción de calor de la barra combustible.

Esta última opción podría lograrse en reactores de bajo quemado como el CANDU. En tal escenario, los núcleos ^{232}Th inicialmente presentes competirían con el ^{235}U por los neutrones, reduciendo la energía liberada por la fisión, pero generarían ^{233}U físil, contribuyendo así a la producción de energía en etapas posteriores del ciclo de irradiación. Esto compensaría e incluso superaría la producción de energía del combustible UO_2 habitual [15-17]. Sin embargo, este esquema sería desventajoso en quemados superiores a 10-15 MWd/kgHM, ya que la penalización en la reactividad es mayor que la que ocurre en los reactores de UO_2 típicos cuando aumenta el quemado.

Respecto al comportamiento de los combustibles basados en torio y uranio, las propiedades más relevantes del combustible ThO_2 son superiores a las del UO_2 . Su conductividad térmica es mayor, lo que permite una mejor transferencia de calor durante la irradiación

y el decaimiento, permitiendo operar con una menor temperatura para la misma densidad de potencia y dando un mayor margen de tolerancia frente a anomalías operativas que eventualmente pueden conducir a condiciones de riesgo para la integridad del elemento combustible y del núcleo del reactor. El dióxido de torio tiene un punto de fusión más alto y es un material altamente refractario, además de ser una de las sustancias químicamente menos reactivas. No puede alcanzar un estado de oxidación mayor a +4, lo que limita la posibilidad de lixiviación por cursos de agua o reacción con el medio ambiente.

Otro aspecto importante es la liberación de gases de fisión. Se sabe que la fracción de gases producidos debido a la fisión es mayor que en el ciclo del uranio, aunque la matriz de ThO_2 tiene una mayor capacidad de retención de gases, disminuyendo o retrasando su difusión hacia el borde de grano. Una parte muy importante de cualquier ciclo del combustible es la relativa a los materiales generados durante las reacciones nucleares que tienen lugar, tanto en la etapa de irradiación como en la de decaimiento tras su retirada del reactor. Se sabe que, en el ciclo del uranio, se produce una gran proporción de actínidos menores e isótopos de Pu, lo que hace que los niveles de radiotoxicidad del material se mantengan inaceptablemente altos durante aproximadamente $3 \cdot 10^5$ años [17]. Por el contrario, el ciclo del torio, al centrarse en la fisión del ^{233}U , prácticamente no produce Pu durante su irradiación, mientras que la proporción de actínidos menores es sustancialmente menor que la producida en el ciclo del U. Estos factores reducen notablemente la manipulación y almacenamiento de residuos una vez finalizada la etapa de irradiación y decaimiento inicial, permitiendo reducir en dos órdenes de magnitud los periodos de alta radiotoxicidad. Esta reducción es aproximadamente equivalente a la que se conseguiría mediante una etapa de reprocesamiento en el ciclo del uranio, tras la separación del Pu presente y la quema de actínidos menores en otro tipo de reactores, como los reactores inducidos por aceleradores (*Accelerator Driven Subcritical Reactor*, ADSR) [17].

Son diversas las razones por las que el torio se puede pensar como una alternativa al uranio en el diseño de combustibles nucleares de potencia. Una de las razones es que las reservas de torio son más abundantes que las de uranio en la corteza terrestre. Otra razón es que presenta una mayor eficiencia neutrónica que el uranio tradicional. Por otro lado, el dióxido de torio presenta una conductividad térmica mayor que el dióxido de uranio por lo que se puede extraer calor con mayor facilidad redundando en un montón de beneficios al combustible como la disminución de la temperatura central de la pastilla, con todo lo que implica para los fenómenos que ocurren en el combustible como la liberación de gases de fisión, el *swelling* o la interacción pastilla-vaina.

2.3.2. Dióxido de Uranio dopado con óxido de Cromo

Otra de las alternativas bajo evaluación en la construcción de materiales físi les que ingresen dentro del concepto ATF es utilizar óxidos de uranio, dopados con algún compuesto

que mejore sensiblemente algunas de sus condiciones de trabajo y poder aprovechar la experiencia en servicio del material tradicional. Esencialmente, se busca reducir los gases liberados por la irradiación produciendo al mismo tiempo una disminución en la temperatura del combustible dado que la mayor presencia de gases de fisión en el gap disminuye la conductividad del mismo. Entre estas aleaciones se propone el estudio del UO_2 dopado con óxido de cromo.

Típicamente la concentración de óxido de Cromo no supera las 1600 ppm. Al dopar una pastilla de dióxido de uranio, se busca aumentar su tamaño de grano. Este dopado produce principalmente dos efectos deseados [18]. En primer lugar, disminuye la resistencia mecánica de la pastilla, es decir, la vuelve más blanda. Esto disminuye los efectos negativos de la interacción mecánica entre la pastilla y la vaina denominada PCMI (por sus siglas en inglés *Pellet-Cladding Mechanical Interaction*). En segundo lugar, aumenta la retención de gases de fisión dentro de la misma pastilla. Para que esto se produzca el dopado produce dos efectos contrapuestos. Por un lado, el tamaño de grano más grande genera un camino más largo para la difusión de los gases de fisión desde la zona de producción del gas como producto de fisión hacia el borde de grano. Es así que los gases suelen liberarse cuando la concentración intergranular de gases de fisión llega a una concentración de saturación moviéndose a través de un camino producido por los mismos. Por otro lado, el efecto contrapuesto es el aumento del coeficiente de difusión debido al aumento de vacancias generado por el dopado. Este efecto aumenta la liberación de los gases debido a que aumenta la velocidad con que estos llegan al borde. Sin embargo, en la competencia de estos dos fenómenos el tamaño de grano termina ganando.

2.4. Materiales para Vainas ATF

2.4.1. FeCrAl

En el pasado, antes de usar las aleaciones de zirconio, se solían utilizar aleaciones de acero inoxidable [10]. En la búsqueda de alternativas ATF, se tomó en consideración el uso de aceros nuevamente y surgieron como candidatas las aleaciones con hierro, cromo y aluminio denominadas FeCrAl. Estas aleaciones presentan la ventaja de que al ser ferríticas presentan mayor resistencia a la fisuración asistida por el ambiente (o como se conocía anteriormente, corrosión bajo tensión) que sus predecesoras austeníticas inoxidables. Entre las más conocidas están las C35M, T35Y2, B105N, KANTHAL APMT, entre otras. En esta tesis trabajaremos con la primera y la última de las mencionadas debido a que el proyecto ATF-TS proveyó datos para esas aleaciones.

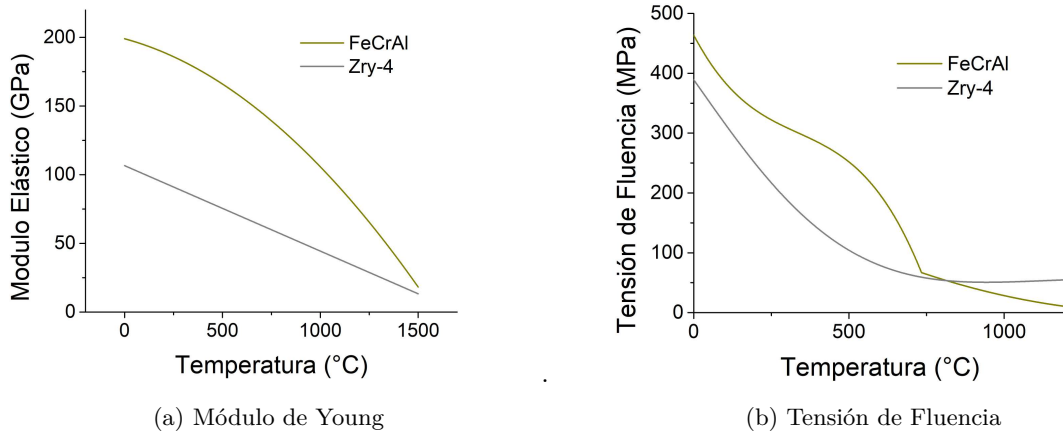


Figura 2.5: Comparación entre modelos de Módulo de Young y Tensión de Fluencia para FeCrAl y Zry-4

Estas aleaciones tienen mejores propiedades mecánicas (rigidez y resistencia mecánica, ver modelos en la Figura 2.5) y menor oxidación a alta temperatura (espesores de óxido de un orden de magnitud menor en condiciones normales de operación, ver Figura 2.6, y tres órdenes de magnitud en condiciones de accidentes LOCA) que las aleaciones nucleares tradicionales[10]. Como consecuencia de todo esto la barra combustible mantiene su integridad por más tiempo permitiendo que en caso de un accidente los sistemas de seguridad de inyección de agua tengan más tiempo para activarse antes de la falla de la vaina, por lo que se mantendría la geometría refrigerable, mejoraría la retención de productos de fisión y ralentizaría la cinética de las reacciones durante escenarios de accidente[10]. También permite un aumento de la temperatura pico de operación y la capacidad de deformación. Además, las aleaciones FeCrAl no presentan reacciones fuertemente exotérmicas durante la oxidación como sí lo hacen las aleaciones de zirconio, evitando así la generación adicional de calor en la superficie de la vaina[10].

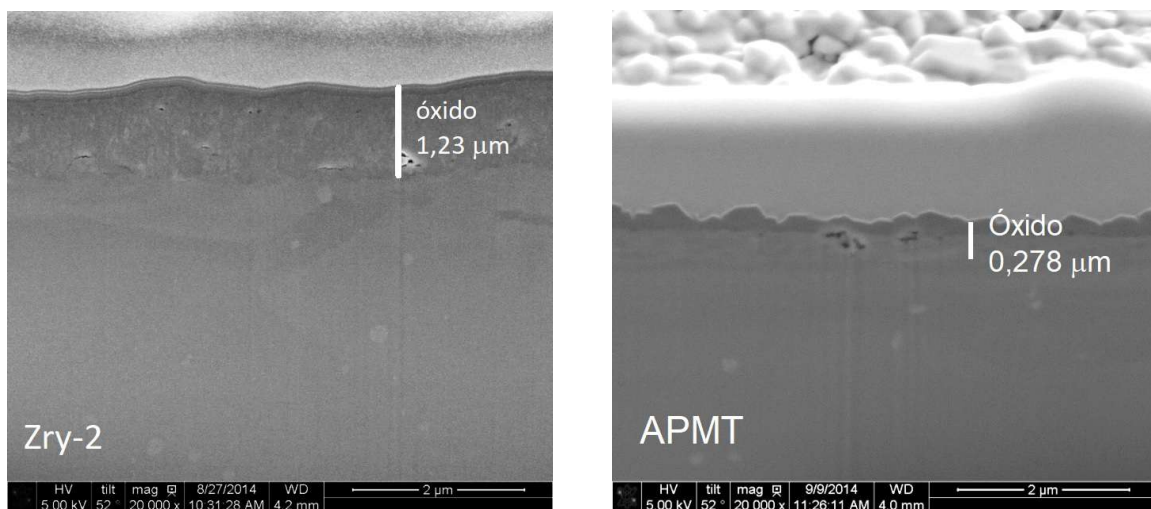


Figura 2.6: Sección de cupones expuestos a condiciones simuladas de un BWR durante un año ($288^{\circ}\text{C} + 2 \text{ ppm } \text{O}_2$). A la izquierda Zry-2; a la derecha APMT un tipo de aleación FeCrAl [10]

Sin embargo, estas aleaciones también presentan algunas desventajas. Por un lado, penalizan el flujo de neutrones debido a una mayor sección de captura neutrónica de los componentes de la aleación como el hierro [10]. Esto se puede mitigar reduciendo el espesor de la vaina a un valor cercano a dos tercios del valor original para que haya menos material que absorba neutrones, y aumentado ligeramente el diámetro de la pastilla para tener más potencia térmica. Por otro lado, debido a que el FeCrAl no reacciona con el hidrógeno como sí lo hacen las aleaciones de zirconio formando hidruros, el tritio difunde a través del FeCrAl ocasionando la posible liberación de tritio al circuito primario[10] que afecta un poco mas a los BWR que no presentan la división con un secundario. Para mitigar este potencial problema, se está estudiando la generación de una capa de alúmina protectora ya sea en la cara interna y/o externa de la pared de la vaina [10]. Otra desventaja es una temperatura de fusión más baja (1500°C vs 1850°C) que se ve compensada por el hecho de la oxidación autocatalítica del zirconio produciendo su fragilización.

2.4.2. Aleaciones de Zirconio recubiertas con Cromo

Uno de los primeros candidatos que se pensaron como concepto de combustibles ATF, fue modificar ligeramente la vaina tradicional de aleaciones de Zr aprovechando la experiencia en servicio y la tecnología que se conocía hasta el momento. Estas modificaciones buscaban:

- Reducción de la corrosión y contenido de hidrógeno durante condiciones normales de operación;
- Propiedades físicas y mecánicas equivalentes o superiores a fin de ciclo de radiación;
- Impacto despreciable en la economía de neutrones dentro del núcleo;
- Cinética de oxidación en vapor a alta temperatura más lenta;
- Mayor resistencia mecánica a alta temperatura para mantener una geometría refrigerable.

Dentro de esas modificaciones, se estudió recubrir las vainas de Zr con distintos materiales y distintos métodos de deposición. Se estudiaron recubrimientos metálicos como Cr puro, aleaciones binarias de Cr-Al, aleaciones de FeCrAl, recubrimientos multicapa de Cr/FeCrAl; se estudiaron también recubrimientos cerámicos como Nitruros (CrN, TiN, TiAlN, CrAlN y multicapas) y fases MAX (Ti_2AlC , Cr_2AlC , Zr_2AlC , Zr_2SiC). Algunas de las técnicas de deposición que se estudiaron fueron *Physical Vapour Deposition* (PVD), *Chemical Vapour Deposition*(CVP), *Thermal Spray Deposition* (TSD) y *Three-dimensional Laser Coating*, entre otras. Dentro de estas opciones, una de las más exitosas son los recubrimientos con Cr puro depositado mediante PVD.

Entre las ventajas de estos conceptos se pueden encontrar:

- Reducción significativa de la oxidación con vapor a alta temperatura que conducen a reducir la producción de hidrógeno y liberar calor;
- Mejora en la ductilidad luego del enfriamiento rápido;
- Una reducción de la velocidad de *creep* a alta temperatura ralentizando el *ballooning* y el *burst*.

Dentro de los desafíos se encuentran:

- El recubrimiento tiene que ser lo suficientemente grueso para reducir significativamente la oxidación con vapor a alta temperatura;
- Potencial formación de eutécticos de bajo punto de fusión entre el recubrimiento y el sustrato;
- El recubrimiento tiene que ser lo suficientemente fino para limitar la potencial formación de eutécticos.

En la Figura 2.7 se pueden ver dos micrografías de una vaina recubierta con $15\ \mu\text{m}$ de Cr. En la imagen de la izquierda se observan las dimensiones comparadas entre el recubrimiento de Cr y el sustrato de Zry previa a un ensayo de oxidación en vapor a 1200°C durante 10 minutos. En la de la derecha se observa la formación de la capa protectora de Cr_2O_3 luego de dicho ensayo.

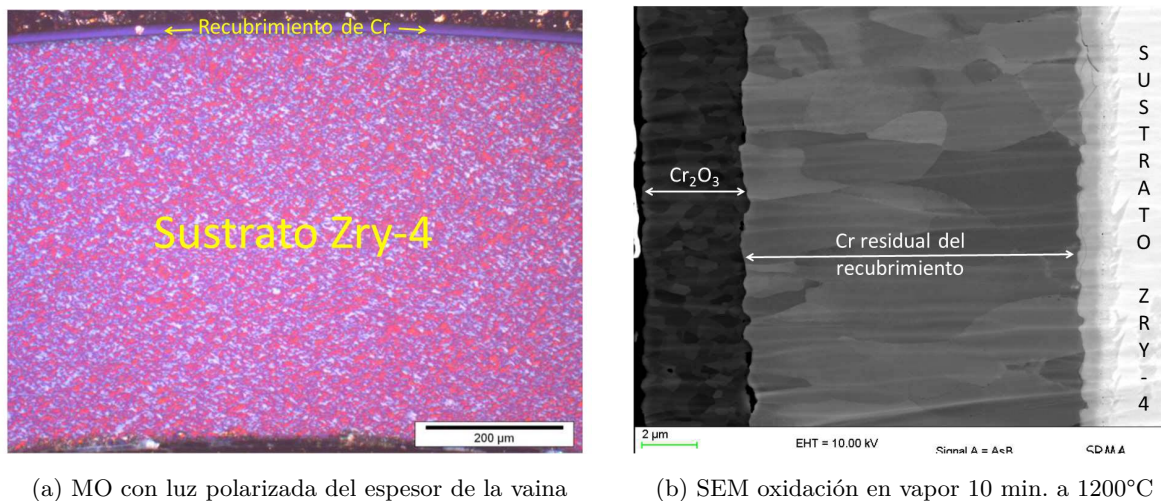


Figura 2.7: Micrografías de una vaina recubierta con $15\ \mu\text{m}$ de Cr [19]. (a) micrografía de microscopía óptica con luz polarizada del espesor de la vaina como se recibió antes del ensayo de oxidación. (b) Micrografía SEM del espesor del recubrimiento de la vaina oxidada en vapor de un solo lado luego de 10 minutos a 1200°C

2.4.3. Zirconio - 1 % Niobio

La aleación de zirconio y niobio (Zr-1 %Nb) está compuesta principalmente por zirconio como metal base, con niobio como elemento de aleación y otros elementos en menor

proporción. Su alto punto de fusión, resistencia a la corrosión y excelentes propiedades mecánicas bajo el trabajo en frío la hacen ampliamente utilizada en sectores como la química, la electrónica, la industria aeroespacial y, especialmente, la industria nuclear.

En particular, esta aleación se emplea actualmente como material de vaina en los elementos combustibles de reactores de potencia PWR. Su composición mejora la resistencia mecánica sin comprometer la plasticidad ni las propiedades de mecanizado. Además, incrementa la resistencia a la oxidación y la corrosión, lo que la convierte en un material atractivo para su aplicación en entornos exigentes.



Figura 2.8: Aspecto posterior a la prueba de los segmentos de vainas de aleación de zirconio después de la oxidación a 1273 K (en aire) durante 30 y 80 minutos, respectivamente[3]

En los reactores de diseño VVER (o WWER), desarrollados en la ex Unión Soviética y en la actual Rusia, esta aleación ha sido utilizada desde sus primeros diseños[20]. Sin embargo, también puede considerarse parte de los materiales ATF, ya que sus propiedades han sido revisadas y adaptadas para diseños modernos, basándose en su desempeño comprobado. Como resultado, han surgido aleaciones patentadas como M5 (Zr-1 %Nb-O, patentada por Areva [21]) y ZIRLO (Zr-1 %Nb-1 %Sn-0,1 %Fe, patentada por Westinghouse [21]), en las cuales se han incorporado elementos adicionales para optimizar su rendimiento, aunque conservan la base de Zr-1 %Nb.

Las macrografías en la Figura 2.8 muestran la degradación severa de los segmentos de

vainas de Zry, M5 y ZIRLO a 1273 K. A esta temperatura, todas las aleaciones pierden su integridad en un tiempo máximo de una hora de oxidación[3].

Por otra parte, la aleación Zr-2.5 %Nb se emplea principalmente en tubos de presión de reactores tipo CANDU. Estas aleaciones han sido diseñadas para operar a temperaturas cercanas a 300°C y se han trabajado en dos condiciones[22, 23]: una mediante extrusión en caliente a 840°C seguida de un trefilado en frío del 15-20 %, y otra mediante extrusión en caliente, templado desde los 880°C, trefilado en frío del 3-15 % y recocido por 24 horas a 500°C. En este último caso, se logra la mayor resistencia entre las aleaciones de zirconio establecidas. Su comportamiento mecánico y respuesta a la irradiación neutrónica dependen en gran medida del procesamiento metalúrgico, incluyendo textura, densidad de dislocaciones y estructura de grano. Desde su introducción en la industria nuclear, se ha adquirido un conocimiento considerable sobre estas propiedades, permitiendo una mejora sustancial en su desempeño en operación[24, 25]. Esta experiencia resulta valiosa para el desarrollo de nuevos materiales ATF destinados a futuras generaciones de reactores.

2.4.4. Compuesto de matriz y fibra de Carburo de Silicio (SiC/SiC)

Las fibras de carburo de silicio (SiC) que refuerzan una matriz del mismo material (SiC/SiC), como se ilustra en la Figura 2.9, presentan un gran potencial debido a su baja activación y su escasa absorción de neutrones. Además, constituyen un material capaz de resistir temperaturas extremadamente elevadas y dosis altas de irradiación[26]. La variante de SiC/SiC con mayor tolerancia a la radiación está compuesta por fibras y matriz de β -SiC puro, casi estequiométrico y altamente cristalino. La producción óptima de estos materiales se logra mediante infiltración química de vapor (CVI) o sinterización en fase líquida, destacando el proceso de nanoinfiltración y fase eutéctica transitoria (NITE). De estos métodos, CVI es un proceso bien establecido aunque relativamente lento y costoso, mientras que NITE, aunque menos desarrollado, podría permitir la producción más rápida y económica de productos con la calidad requerida, a pesar de las dificultades en la fabricación de tubos largos y delgados[27].

En la mayoría de los diseños de SiC/SiC, la superficie exterior está cubierta por una capa monolítica de SiC, la cual ha demostrado una excelente resistencia a la oxidación en presencia de vapor hasta temperaturas de 1600 °C[28, 29]. No obstante, el desempeño de SiC/SiC bajo condiciones hidrotermales (agua a alta temperatura y presión), como las que se encuentran en un LWR, es deficiente. En estas condiciones, la capa de SiO_2 formada no actúa como una barrera protectora efectiva. Se ha comprobado que la adición de hidrógeno disuelto en el refrigerante de un PWR puede disminuir la velocidad de disolución[30]. Sin embargo, la generación de especies reactivas debido a la irradiación de neutrones también contribuye negativamente a la corrosión hidrotermal del SiC/SiC, lo que genera incertidumbre respecto a la efectividad del control de la disolución mediante la adición de hidrógeno disuelto.



Figura 2.9: Segmento de vaina de combustible de SiC/SiC que incluye un revestimiento metálico[31]

El uso de SiC/SiC como material de vaina presenta varios desafíos en comparación con las vainas metálicas convencionales, lo que implica tiempos de desarrollo más prolongados. Un problema clave es la unión hermética de los tapones de los extremos de la vaina, ya que la soldadura convencional no es viable. Las estrategias en estudio incluyen unión por difusión, unión en fase eutéctica transitoria, soldadura fuerte metálica y unión basada en SiC derivado de polímeros[32].

La introducción de SiC/SiC como material de vaina también podría impactar el diseño de las barras de combustible y los EECC. Es posible que se requiera ajustar el *gap* entre la pastilla de combustible y la vaina, así como modificar el espesor de la vaina y el diámetro de las pastillas combustibles para optimizar el desempeño de cada EC. Desde un punto de vista económico, SiC/SiC presenta la ventaja de una menor absorción de neutrones en comparación con otras vainas candidatas, lo que puede traducirse en posibles ahorros.

Actualmente, los costos de fabricación de SiC/SiC son considerablemente más altos que los de las aleaciones de zirconio. Aún se desconoce en qué medida podrían reducirse estos costos mediante la producción a gran escala y la implementación de tecnologías de fabricación avanzadas.

Referencias

- [1] *Evaluación y verificación de la seguridad de las centrales nucleares*. Inf. téc. International Atomic Energy Agency, 2009, págs. 1-110.
- [2] M. Ragheb. *Loss of coolant accident, Curso Safety analysis nuclear reactor system, Universidad de Illinois*, 2011.
- [3] M. Steinbrück y M. Böttcher. “Air oxidation of Zircaloy-4, M5 and ZIRLO™ cladding alloys at high temperatures”. *Journal of Nuclear Materials* 414 (2011).
- [4] R. Nagy. *Optical measurement of the high temperature ballooning of nuclear fuel claddings, Review of Scientific Instruments* 89, 125114, 2018.
- [5] NUREG/CR-7176. *Safety and regulatory issues of the thorium fuel cycle*. Oak Ridge National Laboratory, USNRC, Office of Nuclear Regulatory Research, 2014.

- [6] Y. K. Bibilashvili, N. B. Sokolov, L. N. Andreeva-Andrievskaya, V. Y. Tonkov, A. V. Salatov, A. M. Morosov y V. P. Smirnov. "Thermomechanical properties of zirconium-based alloys oxidized claddings in LOCA simulating conditions". IAEA-TECDOC-CD-1320. Norway, 2001.
- [7] S. Bragg-Sitton, B. Merrill, M. Teague, L. Ott, K. Robb, M. Farmer, R. Montgomery, C. Stanek, M. Todosow y N. Brown. "Advanced Fuels Campaign Light Water Reactor Accident Tolerant Fuel Performance Metrics: Fuel Cycle Research & Development". *U.S. DOE LWR ATF Performance Metrics Report* (2014).
- [8] K. T. et al. "Advanced oxidation resistant iron-based alloys for LWR fuel cladding". *Journal of Nuclear Materials* 448 (2014).
- [9] B. Pint, K. Terrani, Y. Yamamoto y L. Snead. "Metall". *Mater. Trans E* 2 190 (2014).
- [10] K. Pasamehmetoglu et al. *State-of-the-Art Report on Light Water Reactor Accident-Tolerant Fuels*. Inf. téc. NEA-7317 INIS Reference Number: 50015394. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2018, pág. 372.
- [11] IAEA. *Status of Innovative Small and Medium Sized Reactor Designs 2005*. Text. International Atomic Energy Agency, 2006, pág. 1.
- [12] SNE. *Todo sobre el torio*. 2021. URL: <https://www.revistanuclear.es/divulgacion/todo-sobre-el-torio/>.
- [13] B. Ade, A. Worrall, J. Powers, S. Bowman, G. Flanagan y J. Gehin. *Safety and Regulatory Issues of the Thorium Fuel Cycle*. Inf. téc. ORNL/TM-2013/543; NUREG/CR-7176. Oak Ridge National Lab. (ORNL), Oak Ridge, TN (United States), 2014. DOI: 10.2172/1146984.
- [14] IAEA. *Thorium Fuel Cycle - Potential Benefits and Challenges*. Text. ISBN: 9789201034052 Publication Title: Thorium Fuel Cycle - Potential Benefits and Challenges. International Atomic Energy Agency, 2005, págs. 1-112.
- [15] J. R. Lamarsh y A. Baratta. *Introduction to Nuclear Engineering*. 3rd edition. Prentice Hall, 2001.
- [16] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. EEUU: Technical Information Center, Office of Public Affairs Energy Research y Development Administration, 1976.
- [17] R. Murray. *Nuclear Energy: An introduction to the concepts, systems and applications of nuclear processes*. 5th edition. Butterworth-Heinemann, 2000.
- [18] M. W. Cooper et al. "Fission gas diffusion and release for Cr₂O₃-doped UO₂: From the atomic to the engineering scale". *Journal of Nuclear Materials* 545 (2021), pág. 152590. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2020.152590.
- [19] J.-C. Brachet, M. Le Saux, V. Lezaud-Chaillieux, M. Dumerval, Q. Houmaire, F. Lomello, F. Schuster, E. Monsifrot, J. Bischoff y E. Pouillier. "Behaviour under LOCA conditions of enhanced accident tolerant Chromium coated Zircaloy-4 claddings". Boise, Idaho, USA, 2016.
- [20] L. Yegorova et al. *Data Base on the Behavior of High Burnup Fuel Rods with Zr-1 %Nb Cladding and UO₂ Fuel (VVER Type) under Reactivity Accident Conditions: Description of Test Procedures and Analytical Methods*. Inf. téc. NUREG/IA-0156, Volume 2, IPSN 99/08-2, NSI RRC KI-2179. NRC, 1999, pág. 248.
- [21] A. T. Sanz y A. T. Onrubi. *Diccionario inglés-español sobre TECNOLOGÍA NUCLEAR*. Madrid: Tecnatom S.A., 2008.
- [22] R. KRISHNAN y M. K. ASUNDI. "Zirconium alloys in nuclear technology". *Proc. Indian Acad. Sci. (Engg. Sei.)* 4 (1) (1981).

- [23] D. D. L. *The metallurgy of zirconium*. Atomic Energy Review Supplement, 1969.
- [24] F. R. G. “Zirconium alloys in nuclear technology”. *Can. Met. Q.* 18 (65) (1979).
- [25] I. E. F. *Applications related phenomena in Zr and its alloys ASTM-STP 458*. American Society for Testing Materials, 1969.
- [26] Y. K. et al. “Continuous SiC fiber, CVI SiC matrix composites for nuclear applications: Properties and irradiation effects”. *Journal of Nuclear Materials* 448 (2014).
- [27] W.-J. K. et al. “Fabrication and material issues for the application of SiC composites to LWR fuel cladding”. *Nuclear Engineering and Technology* 45(4) (2013).
- [28] K. T. et al. “Silicon carbide oxidation in steam up to 2MPa”. *Journal of the American Ceramic Society* 97(8) (2014).
- [29] V. A. A. et al. “Oxidation at high temperatures in steam atmosphere and quench of silicon carbide composites for nuclear application”. *Nuclear Engineering and Design* 295 (2015).
- [30] D. K. et al. “Effect of dissolved hydrogen on the corrosion behaviour of chemically vapor deposited SiC in a simulated pressurized reactor environment”. *Corrosion Science* 98 (2015).
- [31] C. Sauder. *Ceramic matrix composites: nuclear applications, Chapter 22 in Ceramic Matrix Composite: Materials, Modeling and Technology*. Wiley library, 2014.
- [32] Y. K. et al. “Radiation-tolerant joining technologies for silicon carbide ceramics and composites”. *Journal of Nuclear Materials* 448 (2014).

3. Modelos de materiales para pastillas

En este capítulo se presentan los principales modelos para las pastillas combustibles estudiadas: óxidos mixtos de Torio y dióxido de Uranio dopado con óxido de Cromo. Hay un modelo que es transversal para ambos materiales y es el modelo de liberación de gases de fisión en dióxido de Uranio. Ese modelo, que ya se encontraba en DIONISIO, fue ligeramente modificado para ambos tipo de material. También se estudia en este capítulo la cadena neutrónica del Torio, que es responsable de la generación del Uranio 233 (material fisil).

3.1. Modelo original de liberación de gases de fisión en óxidos de uranio

Para estudiar la liberación de gases de fisión de los materiales de combustibles de tecnología avanzada es necesario entender el modelo original de DIONISIO para combustibles de UO_2 tradicional. A continuación presentaremos las generalidades más importantes de dicho modelo que fue tomado como base para simular la liberación en óxidos de torio y en combustibles dopados con cromo.

El modelo de liberación de gases de fisión en combustibles basados en dióxido de uranio considera granos esféricos y simula la difusión de átomos de gases nobles (Xe y Kr) generados por la fisión del combustible. Para eso tiene en cuenta la formación de burbujas intragranulares en sitios preferenciales de la red. Estas burbujas captan más átomos de gas de fisión actuando como trampas y eventualmente se redisuelven en la matriz por el impacto de fragmentos de fisión de alta energía. Es así que se produce un equilibrio dinámico entre ambos mecanismos que colaboran en la difusión de gas hacia los bordes de grano formando burbujas intergranulares. El gas en estas se acumula hasta llegar a una concentración de saturación y a la interconexión de burbujas intergranulares por las que sale el gas al volumen libre del combustible.

El modelo de difusión propuesto se resuelve por el método de elementos finitos utilizando un coeficiente de difusión efectivo que tiene en cuenta la captura y la liberación de los átomos de gas en las tramas de la matriz del combustible. Es así que la ecuación diferencial para la difusión en un grano bajo irradiación en coordenadas esféricas es

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 c}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c}{\partial r} \right) - g \cdot c + b \cdot m + \beta \quad (3.1)$$

donde c es la concentración de átomos disueltos de gas en la matriz $\left[\frac{at}{m^3} \right]$, t el tiempo de irradiación [s], r la coordenada radial en el grano esférico [m], D es el coeficiente de difusión de átomos libres de gas en la matriz $\left[\frac{m^2}{s} \right]$, g y b son las probabilidades de captura

y liberación de gas en trampas respectivamente, m la cantidad de átomos atrapados en trampas y β la tasa de generación de átomos de gas producidos por evento de fisión $\left[\frac{at}{m^3s}\right]$. Para condiciones de atrapamiento estacionarias, es decir,

$$\frac{\partial m}{\partial t} = g \cdot c - b \cdot m = 0 \quad (3.2)$$

y definiendo la concentración total de gas en el grano como

$$\psi = c + m = c + \frac{g \cdot c}{b} = c \left(1 + \frac{g}{b}\right) = c \left(\frac{b + g}{b}\right) \quad (3.3)$$

por lo que el coeficiente difusión efectivo queda como

$$D' = D \frac{b}{b + g} \quad (3.4)$$

y se obtiene la ecuación equivalente

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = D' \left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} \right) + \beta \quad (3.5)$$

donde, con las condiciones de borde de grano como sumidero perfecto ($\psi(r = a) = 0$) y de simetría esférica ($\frac{\partial \psi}{\partial r}(r = 0) = 0$).

El coeficiente de difusión D [cm^2/s] está determinado por más de un mecanismo [1]. El mismo presenta tres términos, cada uno con un peso relativo mayor para un rango de temperatura. Para altas temperaturas, predomina el mecanismo de vacancias catiónicas térmicamente activadas modeladas por una contribución de Arrhenius [2-4]

$$D_1 = 7,6 \cdot 10^{-10} \cdot \exp\left(-\frac{7 \cdot 10^4}{RT}\right) \quad (3.6)$$

donde R es la constante de los gases ideales en $\frac{cal}{mol \cdot K}$ y T es la temperatura en K. Para temperaturas intermedias, entre 600 y 1400 °C, predomina el mecanismo regulado por las vacancias e intersticiales producidas por la irradiación. Es así que el segundo término queda de la siguiente manera [2-4]

$$D_2 = 4 \cdot S^2 \cdot j_V \cdot C_V \quad (3.7)$$

donde $S = \sqrt[3]{\Omega}$ es la distancia de salto de átomos, Ω es el volumen atómico, $j_V = 10^{13} \cdot C_V^0$ es la frecuencia de salto de vacancias, $C_V^0 = \exp\left(\frac{-55200}{RT}\right)$ y C_V es la fracción de sitios de vacancias. Para bajas temperaturas, predominan los mecanismos atérmicos de recoil y knock out. La expresión que lo gobierna es proporcional a la tasa de fisiones F en $\frac{1}{cm^3 \cdot s}$ [2-4]:

$$D_3 = 8 \cdot 10^{-40} F \quad (3.8)$$

Así, el coeficiente de difusión $\left[\frac{cm^2}{s}\right]$ sobre todo el rango de temperaturas queda como:

$$D = D_1 + D_2 + D_3 \quad (3.9)$$

El resto de los detalles del modelo se pueden encontrar en [5].

3.2. Óxidos mixtos de Torio

3.2.1. Modelado neutrónico

Para poder modelar la neutrónica del ciclo del Torio, primero se empezó a usar el código neutrónico CONDOR [6]. El paquete de cálculo CONDOR utiliza un método de respuesta heterogénea (HRM, por sus siglas en inglés) bidimensional, con corrientes de acoplamiento dependientes del ángulo, para calcular la distribución del flujo de neutrones en los EECC de los núcleos de los reactores nucleares. En este método, todo el EC se divide en celdas o elementos acoplados. En cada celda, los cálculos se realizan mediante el método de probabilidad de colisión. Las probabilidades de colisión se integran numéricamente utilizando el método de Carlvik con un esquema de trazado de rayos inteligente, seguido de una normalización para reducir las inestabilidades. Se utilizan leyes de transformación sobre los flujos de respuesta y probabilidades de escape y transmisión de colisiones múltiples para reducir el tiempo de cálculo. Este método se aplica no sólo durante el quemado, sino también cuando dos elementos con geometría idéntica tienen secciones eficaces similares. El paquete de cálculo CONDOR contiene una biblioteca de datos nucleares y funciona con un conjunto de programas auxiliares. Una característica distintiva de CONDOR es el uso del método de subgrupos, que permite la simulación del efecto de apantallamiento espacial de las resonancias. Con este código, se simuló la evolución temporal de una pastilla de combustible (Th,Pu). El quemado medio final se dio en valores que van desde combustible fresco hasta 120 MWd/kgHM. También se ajustó el flujo de neutrones dentro de la pastilla.

En esta sección, se describe brevemente los métodos de cálculo utilizados y se proveen las secciones eficaces empíricas que fueron introducidas en DIONISIO. Comparamos esta expresión empírica con la predicción de CONDOR, con el fin de obtener una primera validación.

Evolución de la composición del combustible

En general, la operación de los reactores nucleares genera cambios en la composición del combustible. Los nucleidos iniciales se transmutan después de la absorción de neutrones, produciendo isótopos que se desintegran por β , γ u otro tipo de emisión, o núcleos compuestos que eventualmente se fisioan. El proceso de irradiación inicia la cadena de descomposición de los nucleidos presentes. Para los reactores típicos alimentados con uranio, el proceso genera actínidos, mientras que para los combustibles basados en torio

también se forman algunos isótopos de uranio, entre ellos, el principal objetivo es el ^{233}U físil.

La cadena de desintegración que comienza cuando el ^{232}Th reacciona con los neutrones se muestra en la Figura 3.1, donde los nucleidos considerados en este trabajo en particular están marcados en gris. Esta simplificación se realizó con el fin de concentrarse en la ruta principal de reacciones que conducen a la producción del nucleido físil ^{233}U y probar su evolución a través del sistema de ecuaciones implementado en DIONISIO, dejando la adición de los elementos restantes para la siguiente etapa de esta línea de trabajo. De particular importancia es la consideración del ^{232}U , que se forma tras una reacción (n,2n) en el ^{233}U , dado que se trata de un emisor gamma de larga vida, hecho que requeriría condiciones especiales en el tratamiento y manipulación del combustible gastado.

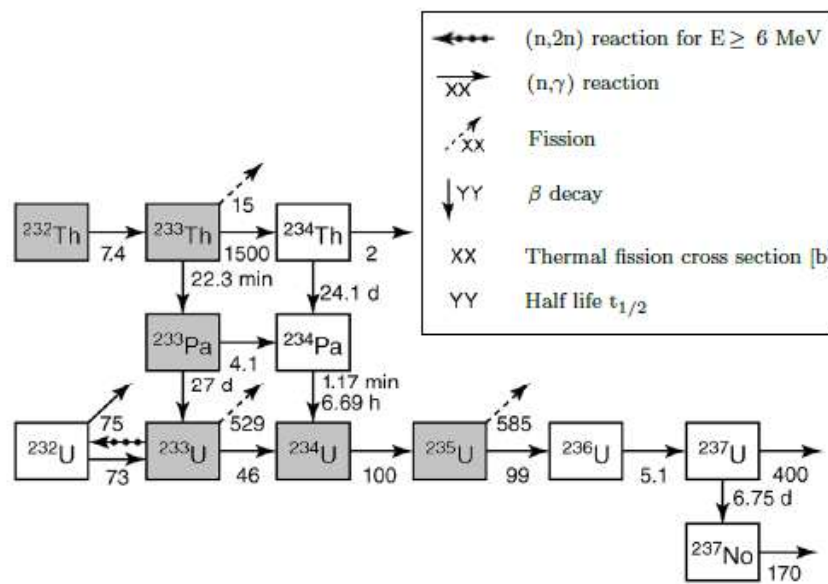


Figura 3.1: Cadena de decaimiento del Torio [7].

La concentración volumétrica de nucleidos $n(r, t)$ de las especies de la cadena de torio simplificada, junto con los correspondientes isótopos de plutonio producidos en el combustible después de la irradiación de Pu, evolucionarán según las siguientes ecuaciones de equilibrio,

$$\begin{aligned}
\frac{\partial n^{02}}{\partial t} &= -\sigma_{at}^{02} \phi_t n^{02} - \sigma_{af}^{02} \phi_f n^{02} \\
\frac{\partial n^{03}}{\partial t} &= \sigma_{\gamma t}^{02} \phi_t n^{02} + \sigma_{\gamma f}^{02} \phi_f n^{02} - (\lambda^{03} + \sigma_{at}^{03} \phi_t + \sigma_{af}^{03} \phi_f) n^{03} \\
\frac{\partial n^{13}}{\partial t} &= \lambda^{03} n^{03} - (\lambda^{13} + \sigma_{at}^{13} \phi_t + \sigma_{af}^{13} \phi_f) n^{13} \\
\frac{\partial n^{23}}{\partial t} &= \lambda^{13} n^{13} - \sigma_{at}^{23} \phi_t n^{23} - \sigma_{af}^{23} \phi_f n^{23} \\
\frac{\partial n^{24}}{\partial t} &= \sigma_{\gamma t}^{23} \phi_t n^{23} + \sigma_{\gamma f}^{23} \phi_f n^{23} + \sigma_{\gamma t}^{13} \phi_t n^{13} + \sigma_{\gamma f}^{13} \phi_f n^{13} - \sigma_{at}^{24} \phi_t n^{24} - \sigma_{af}^{24} \phi_f n^{24} \\
\frac{\partial n^{25}}{\partial t} &= \sigma_{\gamma t}^{24} \phi_t n^{24} + \sigma_{\gamma f}^{24} \phi_f n^{24} - \sigma_{at}^{25} \phi_t n^{25} - \sigma_{af}^{25} \phi_f n^{25}
\end{aligned} \tag{3.10}$$

donde las ganancias y pérdidas de nucleidos dependen de si la reacción nuclear dominante de absorción de neutrones (con sección eficaz σ_a) es fisión (σ_f), captura radiactiva (σ_γ) u otra reacción nuclear (con constante de desintegración λ). Se utiliza un superíndice de dos dígitos para identificar los nucleidos, que son el último dígito de los números atómicos y másicos, por ejemplo, ${}^{232}_{90}\text{Th}$ se toman los números 0 y 2 quedando n^{02} . Los subíndices f y t se refieren a porciones rápidas y térmicas del espectro de neutrones, respectivamente.

En este caso, el problema se simplifica suponiendo que ${}^{233}\text{Pa}$ decae directamente a ${}^{233}\text{U}$, despreciando la formación de nucleidos de vida media corta. De manera similar, no se consideran ni ${}^{234}\text{Th}$ ni su contribución a ${}^{234}\text{Pa}$.

La solución a las ecuaciones de equilibrio presentadas en los párrafos anteriores requiere que se conozca el flujo de neutrones, las constantes de desintegración y las secciones eficaces de absorción y fisión de cada nucleido involucrado, para poder calcular su tasa de cambio de concentración en cada paso de tiempo y así seguir su evolución durante la irradiación.

El flujo de neutrones se calcula a partir de los datos de la historia de potencia utilizados como entrada para el análisis del caso, y varía en cada paso de tiempo como resultado de los cambios en la concentración de los nucleidos físi les presentes. Por lo tanto, una variación en las especies hace que el flujo cambie para igualar los valores de potencia tomados como entrada.

Aproximación de las secciones eficaces de las reacciones

Para calcular el equilibrio de especies bajo irradiación para el esquema de combustible de torio en el código DIONISIO, es necesario ordenar y ajustar los valores de sección eficaz promedio relevantes, de modo que puedan usarse para resolver el sistema de ecuaciones de equilibrio Ecuación 3.10. Como DIONISIO se centra en cálculos de comportamiento térmico y mecánico, que por sí mismos son exigentes desde el punto de vista computacional, se debe simplificar el problema de conocer cada sección eficaz y su variación con el

quemado, el radio de la pastilla y el contenido de nucleidos físi-les. Los códigos neutróni-cos dedicados utilizan bibliotecas de datos nucleares ampliamente conocidas, de las que obtienen datos de secciones eficaces según las condiciones que pretenden simular.

Por las razones mencionadas, DIONISIO necesita utilizar un modelo que permita la aproximación de secciones eficaces promedio a partir de bibliotecas de datos nucleares. En este trabajo, la aproximación se desarrolló a partir de cálculos de secciones eficaces preprocesados proporcionados por el código neutrónico CONDOR, lo que redujo el pro-blema para producir dos secciones eficaces grupales, adecuadas a las necesidades de esta etapa del trabajo. CONDOR trabaja con las secciones eficaces propiamente dichas y hace un cálculo por celdas de las secciones eficaces promedio de cada celda en función de dis-tintos parámetros mencionados previamente (quemado, radio de la pastilla y contenido de nucleidos físi-les).

La ventaja de este enfoque reside en que, una vez desarrolladas las funciones que apro-ximan secciones eficaces, DIONISIO puede usarse para una amplia gama de problemas independientemente de los códigos de neutrones, siempre que las especies consideradas es-tén incluidas en el modelo. Para ello se solicitaron una serie de ejecuciones del código neu-trónico CONDOR, considerando un amplio rango de quemado de hasta 120 MWd/kgHM, así como contenidos de especies físi-les en el rango 2-20 % en la matriz de ThO_2 . Como resultado, se analizó un conjunto de archivos de salida que contenían los valores relevantes de la sección eficaz y la concentración de especies en la pastilla, a partir de los cuales se de-sarrolló posteriormente el modelo aproximado. En general, para todas las especies en cada grupo de energía, usamos una función de interpolación bicúbica como la Ecuación 3.12. Sin embargo, para la sección eficaz de absorción de neutrones rápidos para ^{232}Th , donde se usa una función específica que solo depende de la radio de la pastilla para capturar el comportamiento de resonancia de este isótopo en la región rápida Ecuación 3.11.

$$\sigma_{af}^{Th232} = (c_1 c_2 + c_3 r^{c_4}) (c_2 + r^{c_4})^{-1} [cm^2], \quad (3.11)$$

donde $c_1 = 6,088 \cdot 10^{-1}$, $c_2 = 1,1176 \cdot 10^7$, $c_3 = 1,5249 \cdot 10^7$ y $c_4 = 33,757$.

$$f(r, b, q) = c_1 + c_2 b + c_3 r + c_4 b^2 + c_5 r^2 + c_6 b^3 + c_7 r^3 + c_8 b r + c_9 b^2 r + c_{10} b r^2 [cm^2] \quad (3.12)$$

En esta última ecuación, b representa el quemado de combustible y r se refiere al radio de la pastilla. Cada uno de los coeficientes c_i tiene una dependencia cúbica del contenido de PuO_2 , representado por q . Sus valores se detallan en las tablas del Apéndice, junto con una lista de los nucleidos considerados en la cadena de desintegración del torio. En todas las ecuaciones, el radio de la pastilla está normalizado a la unidad.

La Figura 3.2 muestra la aproximación de DIONISIO a la sección eficaz rápida de la sección eficaz de absorción de ^{232}Th en el rango de energía rápida y la respuesta de CONDOR para varias composiciones de materiales físi-les. Como se puede apreciar en la figura, la dependencia de la sección eficaz con la composición porcentual en peso de PuO_2

es baja. Lo mismo ocurre en todo el rango de quemado analizado. Las funciones bicúbicas desarrolladas, con los coeficientes detallados en las Tablas del Apéndice, permiten aproximar las secciones eficaces relevantes, de las cuales se muestran algunos ejemplos y comparaciones en la Figura 3.3 que muestra la sección eficaz térmica y rápida para ^{233}Th , en un amplio rango. de composición de especies físil y quemado en comparación con las predicciones de CONDOR, lo que muestra una coincidencia adecuada entre ambos resultados.

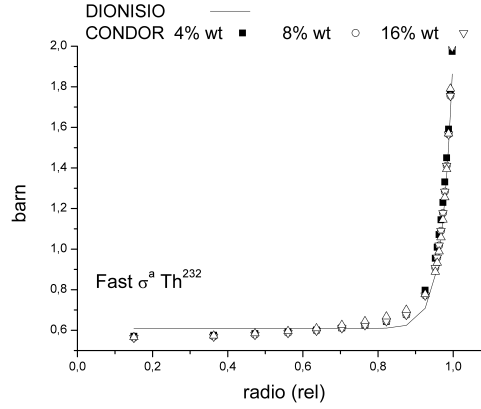


Figura 3.2: Sección eficaz de absorción rápida del ^{232}Th en función del radio relativo. Comparación de DIONISIO con la respuesta de CONDOR para varios % en peso de PuO_2 .

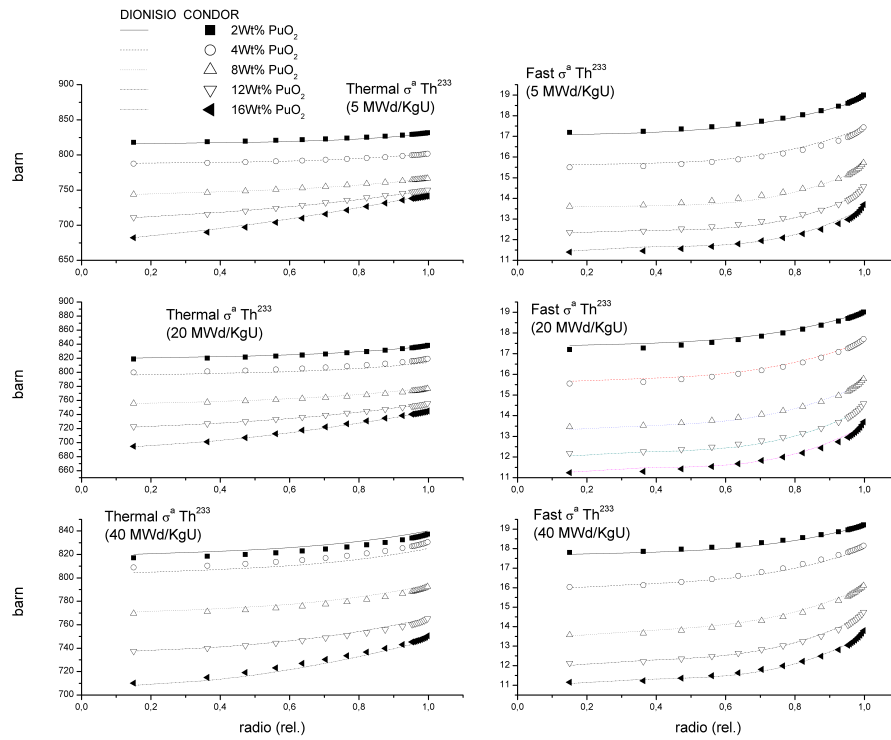


Figura 3.3: Comparación de la sección eficaz de absorción térmica y rápida de ^{233}Th calculadas con DIONISIO y CONDOR en función del radio relativo, para quemados de 5, 20 y 40 MWd/kgU y varias composiciones de % en peso de PuO_2 .

La Figura 3.4 muestra la evolución de la composición, en relación con el aumento del quemado, de ^{232}Th , ^{233}Th , ^{233}Pa y ^{233}U , predicha por DIONISIO y CONDOR. En el caso de ^{232}Th y ^{233}U se observan pequeñas desviaciones entre ambas predicciones para quemados elevados (más de 50 MWd/kgU). En los casos de ^{233}Th y ^{233}Pa las desviaciones se observan en el rango de quemado inferior, con diferencias no superiores al 20 %. Cerca de los bordes de la pastilla se observa un aumento de los productos debido a que la zona más externa tiene más probabilidad de absorber un neutrón que la zona interna.

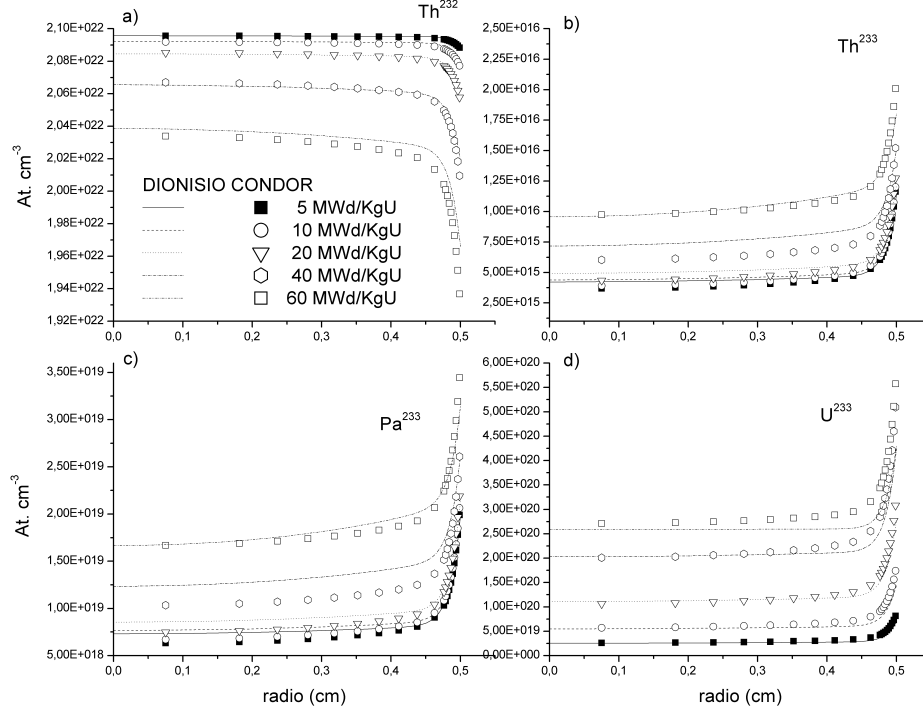
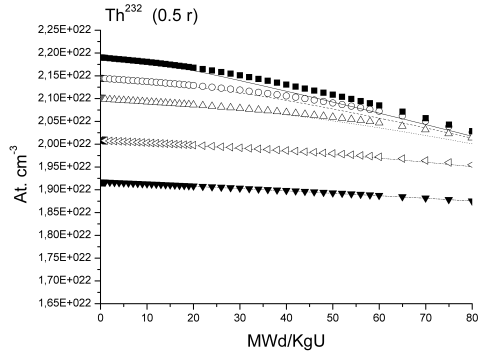
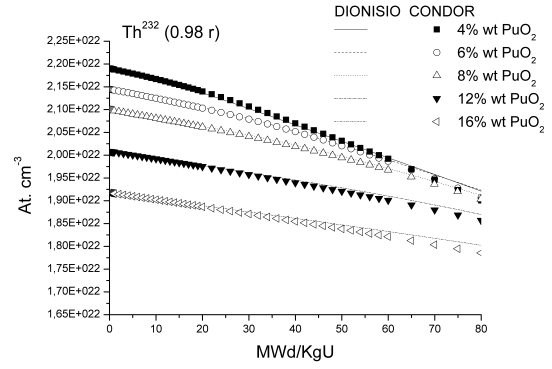


Figura 3.4: Composición de a) ^{232}Th , b) ^{233}Th , c) ^{233}Pa and d) ^{233}U a lo largo del radio de la pastilla para quemados 5, 10, 20 y 40 MWd/kgU para 8wt % PuO_2 comparado con la evolución predicha por CONDOR.

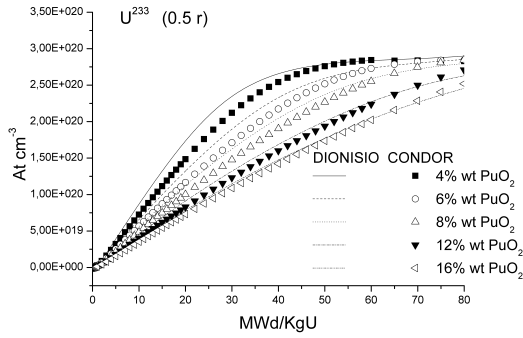
La Figura 3.5 presenta una comparación de ^{232}Th y ^{233}U , en dos posiciones radiales de la pastilla, predichas por CONDOR y DIONISIO. En ellos se pueden analizar varios puntos interesantes. En primer lugar, relacionando Figura 3.5a y Figura 3.5b podemos apreciar la disminución de la concentración cerca del borde exterior de la pastilla con respecto a las posiciones centrales. Esto se correlaciona con el comportamiento del ^{232}Th observado en la Figura 3.4. También hay una muy buena coincidencia en todos los radios de las pastillas y para quemados de hasta 60 MWd/kgU. Sin embargo, en el caso de la Figura 3.5c y la Figura 3.5d para la concentración de ^{233}U , aunque se puede ver una buena correlación en el centro de la pastilla para todo el rango de composición de material físil, se observa una desviación en las regiones exteriores de la pastilla, especialmente para quemados de hasta 30 MWd/kgU. Esta desviación se produce en una pequeña porción de la pastilla, como se puede apreciar en la Figura 3.4, e introduce un pequeño error en la cantidad total de ^{233}U en la pastilla y afecta al siguiente cómputo de potencia y quemado del combustible.



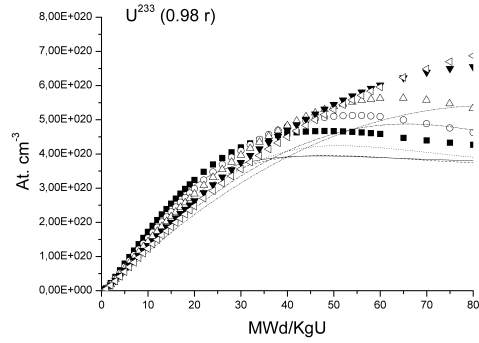
(a) ^{232}Th en el medio de la pastilla



(b) ^{232}Th a 0.98 veces el radio de la pastilla



(c) ^{233}U en el medio de la pastilla



(d) ^{233}U a 0.98 veces el radio de la pastilla

Figura 3.5: Concentraciones calculadas por DIONISIO y CONDOR en función del quemado para composiciones de 4wt %, 6wt %, 8wt %, 12wt % y 16wt % PuO_2 .

Dado que DIONISIO funciona en función de un historial de potencia lineal específico, el flujo de neutrones térmicos correspondiente debe calcularse internamente. Después de calcular el coeficiente de difusión de ThO_2 con la aproximación macroscópica habitual de la sección eficaz de transporte y calcular el flujo en la barra de combustible cilíndrica mediante funciones de Bessel, se consideran tanto la potencia lineal instantánea como la concentración de todas las especies físis presentes para el cálculo del flujo de neutrones efectivo en cada paso de tiempo, que finalmente ingresa a las ecuaciones de equilibrio. En el caso del flujo rápido, utilizamos un procedimiento diferente. Estimamos la forma del flujo, utilizando los datos obtenidos de CONDOR, en función del radio de la pastilla, el enriquecimiento (o contenido de Pu) y el quemado, como hicimos en el caso de las secciones eficaces. Después de eso, estimamos el flujo rápido usando la expresión dada en la Ecuación 3.13 y la función de forma presentada en la Tabla 3.1.

$$\phi_f = \text{Forma}_{ff} P_{\text{Vol}} 1,0 \times 10^{13} \quad (3.13)$$

donde P_{Vol} se refiere a la potencia volumétrica en W/cm^3 .

De esta manera, pudimos crear distintas funciones para las secciones eficaces sin tener la necesidad de recurrir a toda una librería de cálculos de secciones eficaces como sí tiene

Tabla 3.1: Función de forma del flujo rápido (Forma_{ff}) para el ciclo del torio.

Coeficientes principales (flux _{fast})					
$\mathbf{c}_{\text{fast}} =$	$2,3490 \times 10^{-1}$	$-8,6543 \times 10^{-2}$	$2,3317 \times 10^{-2}$	$-2,5291 \times 10^{-3}$	$9,7824 \times 10^{-5}$
	$3,9289 \times 10^{-3}$	$-9,0852 \times 10^{-4}$	$5,0562 \times 10^{-5}$	$0,0000$	$0,0000$
	$-6,9424 \times 10^{-4}$	$9,7941 \times 10^{-4}$	$-1,3272 \times 10^{-3}$	$2,1939 \times 10^{-4}$	$-7,3631 \times 10^{-6}$
	$-1,7573 \times 10^{-4}$	$1,3342 \times 10^{-4}$	$-3,6117 \times 10^{-5}$	$4,1521 \times 10^{-6}$	$-1,6934 \times 10^{-7}$
	$4,4764 \times 10^{-2}$	$1,9322 \times 10^{-3}$	$-2,1945 \times 10^{-3}$	$0,0000$	$0,0000$
	$1,4659 \times 10^{-7}$	$-5,1261 \times 10^{-8}$	$3,5180 \times 10^{-9}$	$0,0000$	$0,0000$
	$-1,7976 \times 10^{-1}$	$-1,4846 \times 10^{-3}$	$-4,0241 \times 10^{-5}$	$0,0000$	$0,0000$
	$-2,0319 \times 10^{-4}$	$-1,6949 \times 10^{-4}$	$1,2325 \times 10^{-4}$	$-1,5161 \times 10^{-5}$	$4,7801 \times 10^{-7}$
	$9,3944 \times 10^{-7}$	$1,8704 \times 10^{-6}$	$-1,1237 \times 10^{-6}$	$1,2711 \times 10^{-7}$	$-3,8889 \times 10^{-9}$
	$-5,4823 \times 10^{-5}$	$1,9450 \times 10^{-5}$	$2,3975 \times 10^{-5}$	$0,0000$	$0,0000$
$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \\ q^4 \end{pmatrix}$					

CONDOR. Simplificamos el cálculo con funciones cúbicas; tenemos resultados parecidos a los de CONDOR y logramos mayor independencia del código DIONISIO de un código neutrónico como aquel.

3.2.2. Propiedades termomecánicas

En la Tabla 3.2 se listan los principales modelos termo mecánicos incluidos en DIONISIO para combustibles mixtos basados en Torio. Los parámetros modelizados influyen directamente en la temperatura del combustible, y, por lo tanto, influyen indirectamente en la liberación de gases de fisión. En dicha Tabla, w es la fracción atómica de la especie 'físil' (Uranio o Plutonio), T la temperatura en K , Bu el quemado en $\frac{MWd}{kgHM}$ y p la fracción de porosidad.

Para estimar la liberación de gases de fisión, se utilizó el mismo modelo de difusión que se utilizó para el uranio descrito en la Sección 3.1 con algunos cambios. Se necesitó cambiar el valor de algunas variables como la conductividad térmica, el coeficiente de dilatación térmica, el coeficiente de difusión, entre otros. Particularmente, el coeficiente de difusión pasa a ser una mezcla ponderada por la fracción en peso de dióxido de torio y dióxido de uranio. El valor para el uranio es el mismo que se explicó en el modelo base constituido por tres componentes descriptas en las Ecuaciones 3.6-3.9. Para el plutonio también se usa el mismo modelo hasta encontrar en bibliografía algún modelo mejor. Para el dióxido de torio se utiliza el valor del coeficiente de difusión utilizado por Long [8] y Tijero Cavia [9]:

$$D_{Th} = 1,06 \cdot 10^{-16} \cdot \exp\left(-\frac{18893,4}{RT}\right) \quad (3.14)$$

De esta manera, el coeficiente de difusión queda como:

$$D_{(U,Th)O_2} = (1 - w) \cdot D_{ThO_2} + w \cdot D_{UO_2} \quad (3.15)$$

Tabla 3.2: Propiedades térmicas y mecánica de (Th,Pu)O₂ en DIONISIO.

Propiedades	Modelos Matemáticos
Densidad Teórica	$\rho_{(Th,Pu)O_2} = (1 - w) \cdot \rho_{ThO_2} + w \cdot \rho_{PuO_2}$ con $\rho_{ThO_2} = 10g/cm^3$ y $\rho_{PuO_2} = 11,5g/cm^3$
Conductividad térmica (basado en [10])	$\kappa_{(Th,Pu)O_2} = \frac{10^{-2}}{A + B T^2 - C T^3} \frac{W}{cm \cdot K}$ [] con $A = (6,071 \cdot 10^{-3} + 0,572 w + 0,5937 w^2) b_1$ $B = 2,6 \cdot 10^{-4}$ $C = 0,035 \cdot 10^{-6} c_1$ $b_1 = 2,2017 (1,4542 - \exp(-0,1593 Bu))$ $c_1 = 0,9013 (2,1095 - \exp(-0,1457 Bu))$
Coefficiente de Expansión Térmica (derivada primera respecto de T de [11])	$\alpha_{(Th,Pu)O_2} = (5,079 \cdot 10^{-4} + 2,251 \cdot 10^{-4} w)$ $+ 2 (3,732 \cdot 10^{-7} + 2,506 \cdot 10^{-7} w) T$ $+ 3 (-7,594 \cdot 10^{-11} + 12,454 \cdot 10^{-11} w) T^2 [1/K]$
Módulo de Young [12]	$E_{(Th,Pu)O_2} = 10^5 E_{ThO_2} (1 + 0,0284 w) [N/cm^2]$ con $E_{ThO_2} = 249,1 (1 - 2,21 p) (1,023 - 1,405 \cdot 10^{-4} T \exp(-\frac{181}{T}))$
Módulo de Poisson [12]	$\nu_{(Th,Pu)O_2} = 0,28$

El resto de las variables del modelo de difusión y liberación de gases de fisión se mantuvieron constantes.

3.3. Dióxido de Uranio dopado con óxido de Cromo

Para modelar las principales propiedades del UO_2 dopado, se mantuvieron la mayoría de los modelos que para el UO_2 sin dopar. Esto se debe a que las propiedades no se ven modificadas considerablemente dado que la baja concentración del dopante no afectan la mayoría de las propiedades [13].

La propiedad que sí se encuentra modificada es el coeficiente de difusión de los gases de fisión en la matriz del combustible. Es por esta razón que se vuelve a utilizar el modelo descrito en la Sección 3.1 modificando el coeficiente de difusión. Este depende de los parámetros D_1 , D_2 y D_3 del combustible sin dopar de las Ecuaciones 3.6-3.9.

Para modificar el coeficiente de difusión se tuvo en cuenta el trabajo de Cooper et al. [13] en el que realizan el cálculo del coeficiente de difusión a primeros principios considerando el dopaje. Realizan dos aproximaciones que denominan Caso A que subestima el efecto del dopante y Caso B que lo sobrestima. Para ambos casos, se modificaron los términos correspondientes a D_1 y D_2 de la Ecuación 3.9 multiplicándolos por una exponencial que depende de la temperatura. El factor D_3 no se ve afectado porque es atómico y depende solo de la tasa de fisión como se observa en la Ecuación 3.8. De esta manera, teniendo en cuenta las Ecuaciones 3.6-3.9 de la Sección 3.1, la difusividad queda expresada

como en la Ecuación 3.16 a continuación [13]:

$$D^{dopado} = \exp\left(-\frac{\Delta H_1}{k_B} \cdot \left[\frac{1}{T} - \frac{1}{T_1}\right]\right) D_1 + \exp\left(-\frac{\Delta H_2}{k_B} \cdot \left[\frac{1}{T} - \frac{1}{T_2}\right]\right) D_2 + D_3 \quad (3.16)$$

donde k_B es la constante de Boltzmann y T_n y ΔH_n son parámetros que dependen del Caso A o el Caso B según corresponda como se ilustra en la Tabla 3.3. DIONISIO ajustó una contribución promedio entre ambos casos. El resto de las variables del modelo de difusión y liberación de gases de fisión se mantuvieron constantes.

Parámetro	Caso A	Caso B
$T_1 = T_2$ (K)	1773	1773
ΔH_1 (eV)	0,3198	0,3282
ΔH_2 (eV)	-0,3345	-0,6998

Tabla 3.3: Parámetros del coeficiente de difusión modificado del UO_2 dopado con Cr_2O_3 [13]

Ambos casos fueron graficados en la Figura 3.6 comparados con el caso de la difusividad del combustible no dopado para observar su variación de la misma manera que se graficó en el trabajo de Cooper et al. [13].

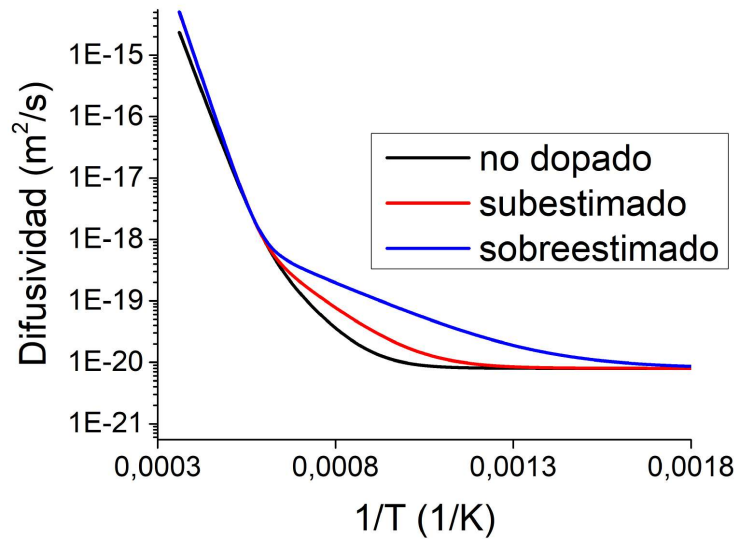


Figura 3.6: Difusividad de UO_2 dopado subestimado y sobreestimado, y no dopado [13]

Referencias

- [1] J. A. Turnbull, R. J. White y C. Wise. “The diffusion coefficient for fission gas atoms in uranium dioxide” (1989). Number: IWGFPT-32.
- [2] A. Denis y R. Piotrkowski. “Simulation of isothermal fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* 229 (1996), págs. 149-154. DOI: 10.1016/0022-3115(95)00203-0.

- [3] P. Löfönen. “Modelling intragranular fission gas release in irradiation of sintered LWR UO₂ fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 304.1 (2002), págs. 29-49. DOI: 10.1016/S0022-3115(02)00856-5.
- [4] M. Maldován, A. Denis y R. Piotrkowski. “Simulation of isothermal fission gas release: An analytical solution”. *Nuclear Engineering and Design* 187.3 (1999), págs. 327-337. DOI: 10.1016/S0029-5493(98)00299-4.
- [5] M. E. González, A. Soba y A. Denis. “Avances Alcanzados en el Modelo de Liberación de Gases de Fisión en el Código DIONISIO: Comportamiento en Rampas de Potencia”. *Mecánica Computacional* 34.25 (2016). Number: 25, págs. 1737-1751.
- [6] E. Villarino. “CONDOR calculation package”. Seoul Korea, 2002.
- [7] W. M. Stacey. *Nuclear reactor physics*. 1st Edition. Wiley, 2001.
- [8] Y. Long. “Modeling the performance of high burnup thorium and uranium PWR fuel”. Thesis. Massachusetts Institute of Technology, 2002.
- [9] J. I. Tijero Cavia. “Simulation of thorium material properties under fission reactor conditions”. Dissertation. München: Technische Universität München, 2017.
- [10] C. Cozzo, D. Staicu, J. Somers, A. Fernandez y R. J. M. Konings. “Thermal diffusivity and conductivity of thorium-plutonium mixed oxides”. *Journal of Nuclear Materials*. Nuclear Materials IV 416.1 (2011), págs. 135-141. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2011.01.109.
- [11] OIEA. *Thermophysical properties database of materials for light water reactors and heavy water reactors. Final report of a coordinated research project 1999-2005*. Inf. téc. IAEA-TECDOC-1496. International Atomic Energy Agency, 2006. URL: %5Curl%7Bhttp://inis.iaea.org/Search/search.aspx?orig_q=RN:37118326%7D.
- [12] K. Björk y L. Kerkonen. “Thermomechanical performance modeling of thorium-plutonium oxide fuel and comparison with on-line irradiation data”. *Journal of Nuclear Materials* 467 (2015), págs. 876-885.
- [13] M. W. Cooper et al. “Fission gas diffusion and release for Cr₂O₃-doped UO₂: From the atomic to the engineering scale”. *Journal of Nuclear Materials* 545 (2021), págs. 152590. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2020.152590.

4. Modelos de materiales para vainas

Una de las propiedades más importantes que intentan controlarse y limitarse en una vaina ATF es la cantidad de óxido que se forma sobre su superficie. La razón principal es que esa capa de óxido contribuye al ingreso de hidrógeno al material, que en caso de accidente y al ser liberado debido a las altas temperaturas, puede acumularse en el núcleo del reactor y generar explosiones. Por otro lado, el óxido posee una conductividad térmica mucho más baja que el material de la vaina y degrada la extracción del calor de las barras.

4.1. Modelos de oxidación de la vaina

Antes de continuar con cada uno de los tipos de materiales que se simulan para la vaina vamos a compartir el modelo de oxidación que en general se usa para las vainas. Cada modelo de oxidación en particular va a modificar el valor de la constante de este modelo.

La cinética de algunos procesos de oxidación, como el de las aleaciones de FeCrAl, presentan la ley descrita por [1]:

$$\Delta m = \Delta m_0 + \sqrt{k} \cdot \sqrt{t} \quad (4.1)$$

donde Δm es la ganancia de masa por unidad de área, Δm_0 es una constante, k es la constante parabólica de oxidación y t es el tiempo. Para incluirlo en DIONISIO, el incremento $\Delta m_{\Delta t}$ en un paso de tiempo Δt se obtiene por derivación:

$$\Delta m_{\Delta t} = \frac{1}{2} \frac{\sqrt{k} \cdot \Delta t}{\sqrt{t}} \quad (4.2)$$

Para evaluar el espesor del óxido, la ganancia de masa tiene que dividirse por la densidad de oxígeno en el óxido ρ_{ox} :

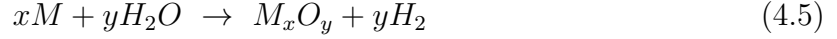
$$\delta = \frac{\sqrt{k} \cdot \sqrt{t}}{\rho_{ox}} \quad (4.3)$$

En cada paso de tiempo Δt , DIONISIO calcula el incremento del espesor $\Delta \delta$ y lo suma al espesor calculado hasta ese instante. De esta manera, este incremento puede ser calculado como:

$$\Delta \delta = \frac{1}{2} \frac{\sqrt{k} \cdot \Delta t}{\rho_{ox} \cdot \sqrt{t}} \quad (4.4)$$

4.1.1. Producción de hidrógeno gaseoso en aleaciones ATF

Al producirse la reacción de oxidación de la vaina, ya sea debido a que el refrigerante sea agua o vapor de agua, se produce al mismo tiempo hidrógeno debido a la reacción del metal con las moléculas de agua. Esta reacción sigue la Ecuación 4.5.



Uno de los fenómenos más conocidos en las aleaciones de Zr, es la captura de hidrógeno cuando se produce esta reacción de oxidación. Parte del hidrógeno producido en esa reacción entra como protones a la vaina generando la fragilización de la misma y disminuyendo la cantidad de hidrógeno liberado al circuito primario. Este fenómeno está caracterizado por una fracción de captura de hidrógeno que se tiene en cuenta tanto para la fragilización como para la liberación de este gas al primario.

A diferencia de las aleaciones de Zr, el FeCrAl y el Cr no capturan ninguna parte de hidrógeno en su superficie sino que lo libera completamente al circuito primario. Sin embargo, igual que en las aleaciones de Zr, es importante estudiar cuánto hidrógeno se forma por su carácter explosivo. Es así que el modelo de oxidación a alta temperatura en vapor tiene en cuenta la liberación de H_2 en condiciones de LOCA. La proporción de generación de masa entre las masas del nuevo óxido y del hidrógeno es 8:1. Esto se puede derivar de la proporción de la masa molecular $M_{especie}$ considerando la Ecuación 4.5 de la reacción de oxidación [2]:

$$\Delta m_{oxido} : \Delta m_{H_2} = \frac{1}{2}M_{O_2} : M_{H_2} \approx 8 : 1 \quad (4.6)$$

Es así que por cada 8 g de oxígeno que ingresa a la vaina, se produce 1 g de hidrógeno. De esta manera la producción de hidrógeno en el FeCrAl y el Cr queda de la siguiente manera:

$$\Delta m_{H_2} = \Delta m_{oxido}/8 \quad (4.7)$$

4.2. FeCrAl

Para modelar las propiedades del FeCrAl se utilizaron datos de las aleaciones C35M y la aleación *KANTHAL APMT* debido a la disponibilidad de datos.

4.2.1. Modelos de propiedades termomecánicas

Pastore et al. [3] presentan diferentes modelos para las principales propiedades termomecánicas y de irradiación, entre ellas: módulo de Young, módulo de Poisson, tensión de fluencia, termofluencia, fluencia por irradiación e hinchamiento. Estas mismas se pueden observar en la Tabla 4.1. donde T_c y T son las temperaturas en $^{\circ}C$ y en K respectivamente, $\dot{\epsilon}$ es la velocidad de deformación, σ_{eff} es la tensión efectiva de Von Mises en N/cm^2 , y ϕ_{fast} y Φ_{fast} son el flujo [*neutrones*/($cm^2 \cdot s$)] y la fluencia [*neutrones*/ cm^2] de neutrones rápidos.

En la Figura 4.1 se pueden observar la comparación de los modelos de las propiedades elásticas con algunas de las mediciones hechas hasta el momento. Dado que el Módulo

Propiedades	Modelos Matemáticos
Módulo de Young [GPa][4]	$E = -5,46 \cdot 10^{-5} \cdot T_c^2 - 3,85 \cdot 10^{-2} \cdot T_c + 1,99 \cdot 10^2$
Módulo de Poisson [4]	$\nu = 3,85 \cdot 10^{-5} \cdot T + 2,68 \cdot 10^{-1}$
Tensión de fluencia [MPa] [5]	$\sigma_Y = \begin{cases} -2,22 \cdot 10^{-6} \cdot T^3 + 4,05 \cdot 10^{-3} \cdot T^2 - 2,70 \cdot T + 9,45 \cdot 10^2 & \text{si } T < 1007K \\ 1,15 \cdot 10^{-4} T^2 + 4,05 \cdot 10^{-1} \cdot T + 3,59 \cdot 10^2 & \text{si } T \geq 1007K \end{cases}$
Termofluencia [s ⁻¹][3]	$\dot{\epsilon} = \begin{cases} 2,89 \cdot 10^{-14} \cdot \sigma_{eff}^{5,5} \cdot \exp\left(\frac{-29709}{T}\right) & \text{si } T \leq 873K \\ 5,96 \cdot 10^{-5} \cdot \sigma_{eff}^{5,5} \cdot \exp\left(\frac{-47136}{T}\right) & \text{si } T > 873K \end{cases}$
Fluencia por irradiación [s ⁻¹] [6]	$\dot{\epsilon} = 4,5 \cdot 10^{-29} \cdot \sigma_{eff} \cdot \phi_{fast}$
Hinchamiento [6]	$\epsilon = 1,5 \cdot 10^{-25} \cdot \Phi_{fast}$

Tabla 4.1: Modelos de propiedades termomecánicas del FeCrAl

de Young y el Módulo de Poisson son aproximadamente constantes para el mismo tipo de aleación, se compararon las regresiones cuadráticas para el primero y lineal para el segundo propuestos por Pastore et al. [3] y Thompson et al. [4] con los datos medidos de diferentes aleaciones de la misma familia en diferentes tratamientos térmicos para verificar que los modelos fueron bien aplicados. Esas comparaciones se encuentran graficadas en la Figura 4.1a y Figura 4.1b.

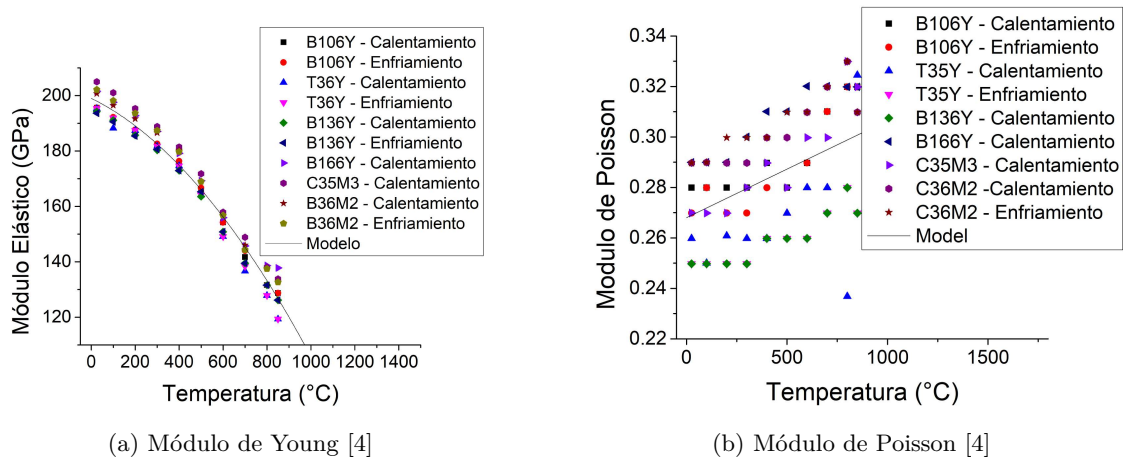


Figura 4.1: Comparción entre propiedades elásticas medidas y simuladas para FeCrAl[4]

Para la tensión de fluencia, Pastore et al. [3] reproducen la Tabla 4.2 obtenida de los puntos presentados en la Figura 10 del trabajo de Yamamoto et al. [5] (donde se analiza el comportamiento de la tensión de fluencia y otras variables en distintas aleaciones FeCrAl, entre otras las C35M después de pasar por un proceso de laminación), y de la temperatura

Temperatura (K)	Tensión de Fluencia (MPa)
291	447
546	314
640	296
825	226
1007	67
1773	0

Tabla 4.2: Valores experimentales de la tensión de fluencia de la aleación C35M de FeCrAl luego de un laminado [3]

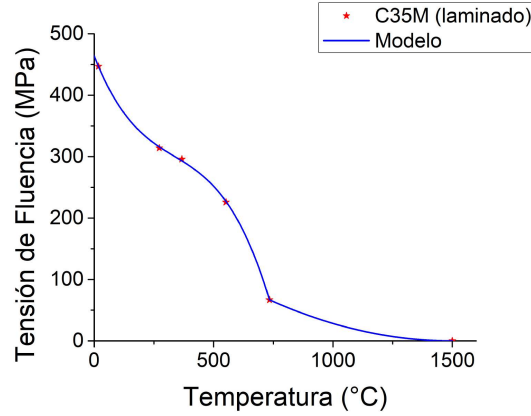


Figura 4.2: Comparación entre datos experimentales [5] y el modelo de la tensión de fluencia del FeCrAl

de fusión de la aleación. Con estos datos, se compuso una función dividida en dos partes: para temperaturas menores que 1007 K se realizó una regresión de orden 3 obteniendo una función cúbica, y para temperaturas mayores que 1007 K y hasta la temperatura de fusión se realizó una interpolación de segundo orden teniendo en cuenta el valor en los extremos (1007 K y 1773 K) y que la derivada en la temperatura de fusión es cero (0) como se muestra en la Tabla 4.1. La comparación entre datos medidos y resultados del modelo se presentan en la Figura 4.2.

4.2.2. Criterio de *burst*

Pastore et al. [3] también presentan un modelo para el criterio de explosión de las vainas que alcanzan una determinada tensión circunferencial basado en algunos resultados experimentales [7]. A continuación, el modelo propuesto:

$$\sigma_{burst} = \begin{cases} \sigma_{UTS} & \text{si } T \leq 796,8K \\ 28440,98 \cdot \exp(-0,005588 \cdot T) & \text{si } T > 796,8K \end{cases} \quad (4.8)$$

La segunda parte de la función en partes corresponde a los resultados experimentales mencionados y es lo que se programó en DIONISIO. En la Figura 4.3 se muestra la comparación de los datos calculados y los resultados experimentales.

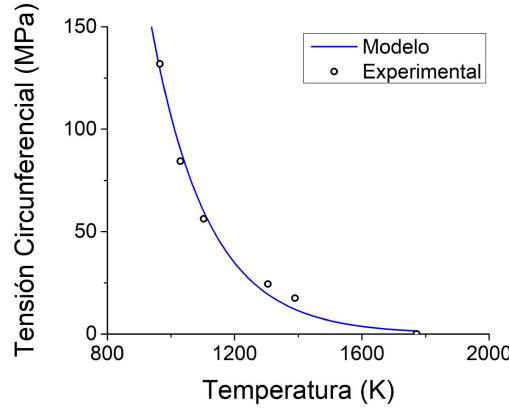


Figura 4.3: Comparación entre datos experimentales [7] y el modelo de la criterio de explosión de vainas

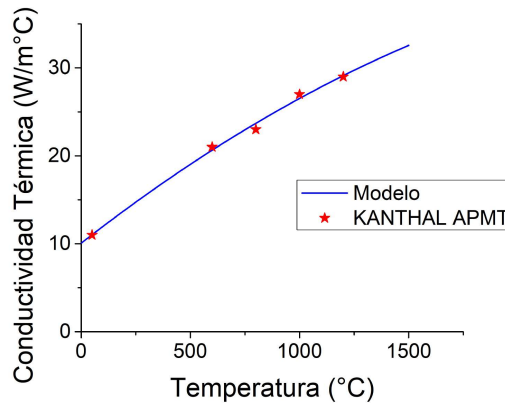


Figura 4.4: Comparación entre la conductividad térmica medida [8] y simulada

4.2.3. Modelos de propiedades termofísicas

De acuerdo con [3], la conductividad térmica puede expresarse como una regresión cuadrática respecto de la temperatura T_c en grados centígrados a partir de los datos medidos en la hoja del fabricante [8]. Tanto el modelo presentado en la siguiente Ecuación 4.9 como los datos provistos por el fabricante están contrastados en la Figura 4.4.

$$\kappa = -2,9216 \cdot 10^{-8} \cdot T_c^2 + 1,9377 \cdot 10^{-4} \cdot T_c + 0,1007 \left[\frac{W}{cm \cdot ^\circ C} \right] \quad (4.9)$$

Para los coeficientes de dilatación térmica Pastore et al. [3] presenta una tabla extraída de la hoja de datos de la aleación *KANTHAL APMTTM* [8] para diferentes rangos de temperatura. La misma se presenta en la Tabla 4.3 que son los coeficientes de dilatación medios para cada rango de temperatura. Con el objetivo de proveer coeficientes de dilatación para rangos intermedios de temperatura podemos definir distintos coeficientes de dilatación para cada rango [9]. Es por eso que el coeficiente de dilatación en el rango 20-250 °C, en el rango 20-500°C y en el rango 250-500°C difiere. Por esta razón es necesario calcular los coeficientes de dilatación para cada rango intermedio: 250-500°C, 500-750°C, 750-1000°C y 1000-1200°C. Basado en Niffenegger y Reichlin [9], recalculamos

Rango de Temperatura (°C)	Coeficiente de Expansión Térmica ($10^{-6}/K$)
20 - 250	12,4
20 - 500	13,1
20 - 750	13,6
20 - 1000	14,7
20 - 1200	15,4

Tabla 4.3: Coeficiente de expansión térmica de la aleación *KANTHAL APMTM* para distintos rangos de temperatura [8]

los valores de los coeficientes de dilatación térmica para los rangos mencionados según la Ecuación 4.10

$$\alpha_{T_1 \rightarrow T_2} = \frac{\alpha_{T_0 \rightarrow T_2} (T_2 - T_0) - \alpha_{T_1 \rightarrow T_0} (T_1 - T_0)}{T_2 - T_1} \quad (4.10)$$

donde $\alpha_{T_x \rightarrow T_y}$ es el coeficiente de dilatación térmica medio en el rango T_x a T_y , T_0 es la temperatura de referencia anterior, T_1 la nueva temperatura de referencia, T_2 la temperatura para la cual queremos saber el valor del coeficiente. Veamos un ejemplo tomando las dos primeras filas de la Tabla 4.3. Dados $\alpha_{20 \rightarrow 250} = 12,4$ y $\alpha_{20 \rightarrow 500} = 13,1$ buscaremos obtener el valor de α para el primer rango intermedio que podemos llamar $\alpha_{250 \rightarrow 500}$:

$$\alpha_{250 \rightarrow 500} = \frac{\alpha_{20 \rightarrow 500} (500 - 20) - \alpha_{250 \rightarrow 20} (250 - 20)}{500 - 250} = 13,744 \quad (4.11)$$

Calculando así para cada rango intermedio de temperaturas tendremos nuevos valores que se presentan en la Tabla 4.4. Estos pueden compararse con la Tabla 4.3 para mayor claridad.

Rango de Temperatura (°C)	Coeficiente de Expansión Térmica ($10^{-6}/K$)
20 - 250	12.4
250 - 500	13.744
500 - 750	14.56
750 - 1000	17.912
1000 - 1200	18.83

Tabla 4.4: Coeficiente de expansión termica de la aleación *KANTHAL APMTM* para nuevos rangos de temperatura

4.2.4. Modelo de Oxidación en Condiciones Normales de Operación

La evolución del espesor del óxido δ en aleaciones FeCrAl expresadas en *cm*, de acuerdo con [3], pueden ser descriptas por la Ecuación 4.3 y Ecuación 4.4, donde δ está expresado

en cm , t en $dias$, $\rho_{ox} = 1,44 \frac{g}{cm^3}$ y $\sqrt{k}$ expresada en $\frac{g}{cm^2 \cdot \sqrt{dia}}$ es:

$$\sqrt{k} = \begin{cases} 1,94 \cdot 10^{-5} & \text{para } PWR \\ 2,2094 \cdot 10^{-5} & \text{para } BWR \end{cases} \quad (4.12)$$

4.2.5. Modelo de Oxidación a Alta Temperatura

Para la oxidación a alta temperatura, se tuvieron en cuenta la Ecuación 4.2 y Ecuación 4.4. Para eso, $\Delta m_{\Delta t}$ está expresada en $\frac{g}{cm^2}$, $\Delta \delta$ en cm , Δt y t en s , $\rho_{ox} = 1,44 \frac{g}{cm^3}$, y para k , la constante de la aleación B136Y expresada en $\frac{g^2}{cm^4 \cdot s}$, de acuerdo con el IAEA-TECDOC-1921 [10] y [2], se modela como:

$$k = \begin{cases} 9,62 \cdot 10^{-12} & \text{si } T \leq 1473K \\ 3 \cdot 10^9 \cdot \exp\left(-\frac{594354}{R \cdot T}\right) & \text{si } 1473 < T \leq 1648K \\ 2,4106 \cdot 10^6 \cdot \exp\left(-\frac{352513}{R \cdot T}\right) & \text{si } 1648 < T < 1723K \\ 4,57 \cdot 10^7 \cdot \exp\left(-\frac{352513}{R \cdot T}\right) & \text{si } T > 1723K \end{cases} \quad (4.13)$$

donde R es la constante de los gases ideales en $\frac{J}{K \cdot mol}$ y T es la temperatura en K .

4.3. Aleaciones de Zirconio recubiertas con Cromo

4.3.1. Modelos termomecánicos y termofísicos

Para modelar las aleaciones de Zirconio recubiertas con Cromo se consideró un mallado donde cada elemento de la vaina tenía asignado un tipo de material con sus respectivas propiedades. A partir de la malla tradicional de DIONISIO, se tomaron los elementos externos de la malla de la vaina y se los dividieron en dos: un elemento sigue perteneciendo a la vaina mientras que el otro, de un espesor del recubrimiento pertenece al Cr obteniendo una malla como la de la Figura 4.5 donde los elementos rojos representan los elementos del recubrimiento, los verdes los elementos de la vaina y los azules los de la pastilla. Obsérvese que el elemento verde más externo, es ligeramente menos ancho que el elemento verde más interno.

De esta manera había elementos de aleaciones de Zirconio (típicamente Zry-4) y elementos de Cromo puro. Los modelos de las propiedades del Zry-4 se encuentran en varias fuentes [11-14]. En la Tabla 4.5 se detallan los modelos de las propiedades del Cr puro donde T es la temperatura en K , R es la constante de los gases ideales en $\frac{J}{K \cdot mol}$, $\dot{\epsilon}$ es la velocidad de deformación y σ_{eff} es la tensión efectiva de Von Mises en $\frac{N}{cm^2}$. La mayoría de estos modelos fueron extraídos de [15, 16].

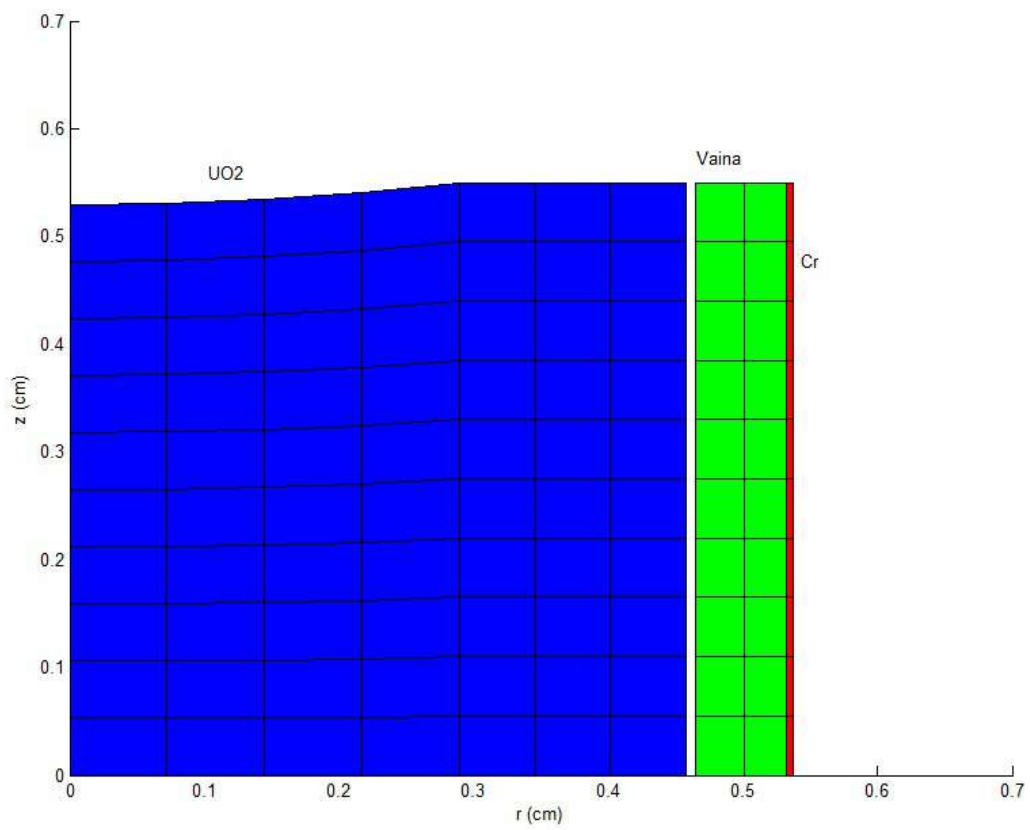
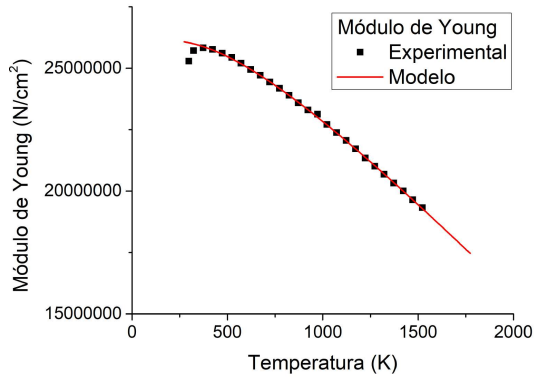


Figura 4.5: Malla 2D de DIONISIO para simular vainas recubiertas. Los elementos azules son de la pastilla, los verdes de la vaina y los rojos externos son del recubrimiento.

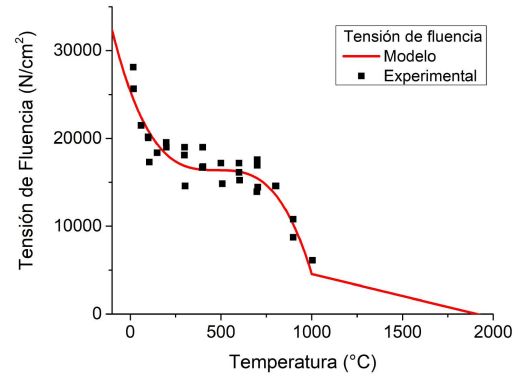
Propiedades	Modelos Matemáticos
Módulo de Young [15]	$E = \left(261,6 - 0,081 \cdot T \cdot \exp\left(-\frac{889,95}{T}\right) \right) GPa$
Módulo de Poisson [15, 16]	$\nu = 0,22$
Tensión de fluencia [15, 16]	$\sigma_Y = \begin{cases} (513,17 - 1,394 \cdot T + 1,856 \cdot 10^{-3} \cdot T^2 - 8,244 \cdot 10^{-7} \cdot T^3) MPa & si \ T < 1273K \\ (0,0503 (T - 2180)) MPa & si \ T \geq 1273K \end{cases}$
Termofluencia	$\dot{\epsilon} = 1,57069 \cdot 10^{-8} \cdot \exp\left(-\frac{306268,8}{R \cdot T}\right) \cdot \sigma_{eff}^{4,41} \cdot s^{-1}$
Conductividad térmica [15, 16]	$\kappa = (101,25 - 6,36 \cdot 10^{-2} \cdot T + 4,85 \cdot 10^{-5} \cdot T^2 + 2,07 \cdot 10^{-8} \cdot T^3) \frac{W}{K \cdot m}$
Expansión térmica [15, 16]	$\alpha = (7,87 + 1,48 \cdot 10^{-3} \cdot T + 5,41 \cdot 10^{-7} \cdot T^2 + 1,27 \cdot 10^{-10} \cdot T^3) 10^{-6} K^{-1}$

Tabla 4.5: Modelos propiedades termomecánicas y termofísicas del Cr puro

En la Figura 4.6 se pueden observar la comparación de los modelos de las propiedades mecánicas del Cr puro y las mediciones experimentales conseguidas para ese material. Por un lado, para el módulo de Young se obtuvieron datos de mediciones mediante frecuencia de resonancia longitudinal de Cr policristalino [15]. Por otra parte, para la tensión de fluencia se utilizaron los datos presentados por Holzwarth y Stamm [17].



(a) Módulo de Young [15]



(b) Tensión de Fluencia [17]

Figura 4.6: Comparación entre propiedades mecánicas medidas y simuladas para Cr puro

Para determinar la fluencia a alta temperatura se tomaron los datos del trabajo de Stephens y Klopp [18] ubicados en la Tabla del mismo. Los valores de tensión fueron pasados de MPa a N/cm^2 multiplicando por 100. Para obtener la ley de creep se tuvo en cuenta la siguiente ecuación [18]:

$$\frac{\dot{\epsilon}}{D} = k \left(\frac{\sigma_{eff}}{E} \right)^n \quad (4.14)$$

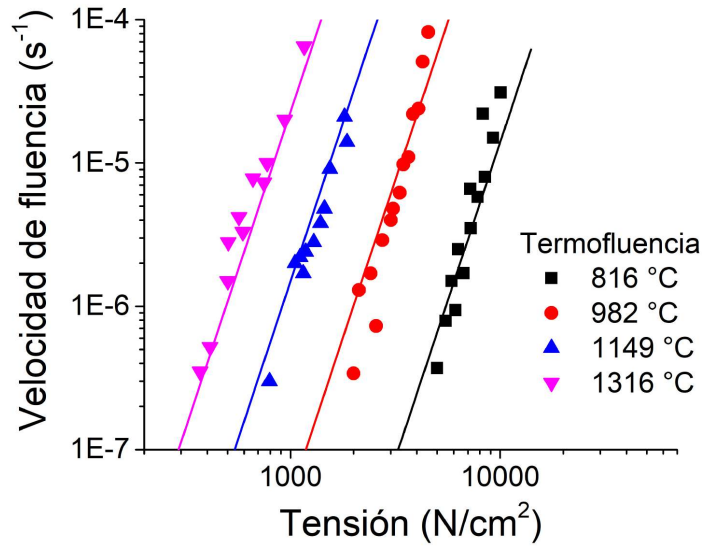


Figura 4.7: Comparación de datos experimentales de termofluencia [18] con el modelo propuesto

donde E es el módulo de Young, D es el coeficiente de difusión que depende de una función de Arrhenius con una energía de activación de $72,3 \frac{kcal}{mol} = 306268,8 \frac{J}{mol}$. De esta manera, si hayamos k y n podemos obtener nuestra ley de creep. Para mayor facilidad se incluyó al módulo de Young dentro de la constante k a modo de aproximación y se obtuvo la ecuación de la Tabla 4.5. La comparación entre los datos experimentales de Stephens y Klopp [18] y el modelo mencionado se presenta en la Figura 4.7.

En cuanto a las propiedades termofísicas como la conductividad térmica y el coeficiente de expansión térmica, se extrajeron los datos experimentales de tales magnitudes físicas de Holzwarth y Stamm [17] y se modelaron según recomiendan en los trabajos de [15, 16].

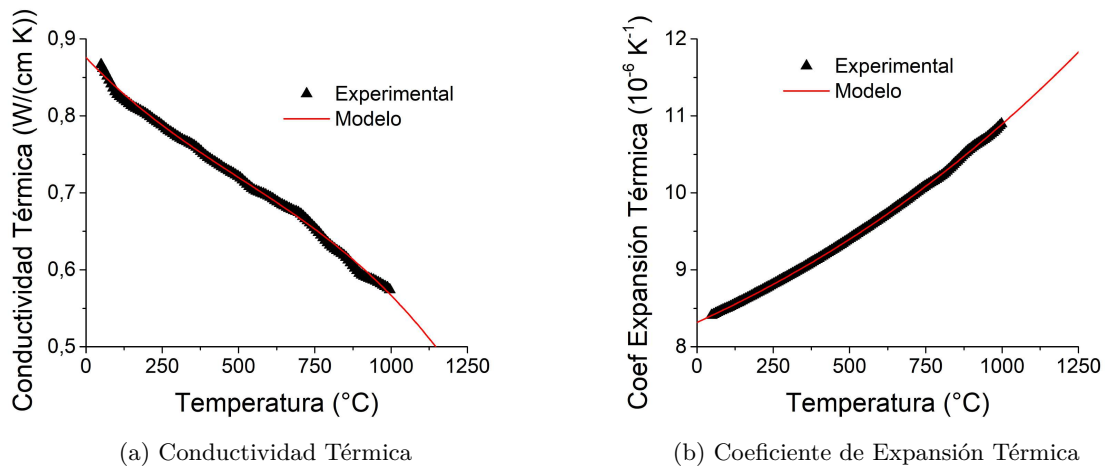


Figura 4.8: Comparación entre propiedades termo físicas medidas [17] y simuladas para Cr puro

4.3.2. Modelo de Oxidación a Alta Temperatura

Para altas temperaturas (entre 674 y 1800 K), se tuvieron en cuenta la Ecuación 4.2 y la Ecuación 4.4. Para eso, $\Delta m_{\Delta t}$ está expresada en $\frac{g}{cm^2}$, $\Delta \delta$ en μm , Δt y t en s , $\rho_{ox} = 429,2 \frac{g}{\mu m \cdot cm^2}$, y para $\sqrt{k}$, expresada en $\frac{g}{cm^2 \cdot \sqrt{s}}$ se modela como:

$$\sqrt{k} = 4,83 \cdot 10^{-2} \cdot \exp\left(-\frac{10481}{T}\right) \quad (4.15)$$

donde T es la temperatura en K.

4.4. Zirconio - 1 % Niobio

4.4.1. Propiedades termomecánicas y termofísicas

Yegorova et al. [19] presentan diferentes modelos para las principales propiedades termomecánicas y termofísicas de las aleaciones de Zr-1 %Nb, entre ellas: módulo de Young [Pa], módulo de Poisson, tensión de fluencia [Pa], la conductividad térmica $\left[\frac{W}{m \cdot K}\right]$ y el coeficiente de expansión térmica $[K^{-1}]$. Estas mismas se pueden observar en la Tabla 4.6. donde T_c y T son las temperaturas en $^{\circ}C$ y en K respectivamente.

Propiedades	Modelos Matemáticos
Módulo de Young	$E = \begin{cases} 1,121 \cdot 10^{11} - 6,438 \cdot 10^7 \cdot T & si \ T < 1073K \\ 9,129 \cdot 10^{10} - 4,5 \cdot 10^7 \cdot T & si \ T \geq 1073K \end{cases}$
Módulo de Poisson	$\nu = 0,42628 - 5,556 \cdot 10^{-5} \cdot T$
Tensión de fluencia	$\sigma_Y = 2,63 \cdot 10^{-7} \cdot T^4 + 1,11 \cdot T^3 - 6,62 \cdot 10^2 \cdot T^2 + 1,82 \cdot 10^5 \cdot T - 1,54 \cdot 10^7$
Conductividad térmica	$\kappa = \begin{cases} 9,5 \cdot 10^{-3} \cdot T_c + 17,01 & si \ T_c < 100^{\circ}C \\ 10,3848 \cdot T_c^{0,117} \exp(-0,115 \cdot 10^{-3} \cdot T_c) & si \ 100 < T_c < 400^{\circ}C \\ 167,88 \cdot T_c^{-0,429} \exp(1,169 \cdot 10^{-3} \cdot T_c) & si \ 400 < T < 1000^{\circ}C \end{cases}$
Coeficiente de expansión térmica	$\alpha_{axial} = \begin{cases} 5,3 \cdot 10^{-6} & si \ 293 < T < 393K \\ 5,4 \cdot 10^{-6} & si \ 393 < T < 573K \\ 5,5 \cdot 10^{-6} & si \ 573 < T < 773K \\ 5,6 \cdot 10^{-6} & si \ 773 < T < 923K \end{cases}$
	$\alpha_{radial} = \begin{cases} 5,3 \cdot 10^{-6} & si \ 293 < T < 393K \\ 5,4 \cdot 10^{-6} & si \ 393 < T < 573K \\ 5,5 \cdot 10^{-6} & si \ 573 < T < 773K \\ 5,6 \cdot 10^{-6} & si \ 773 < T < 923K \end{cases}$

Tabla 4.6: Modelos propiedades termomecánicas y termofísicas del Zr 1 % Nb

4.4.2. Modelo de termofluencia

Debido a que el Zr-1 %Nb puede presentar una o dos fases (α y/o β), en todo el rango de operación, y dado que el comportamiento de la termofluencia de cada fase es distinto,

es necesario considerar aparte este modelo.

Para calcular la termofluencia de la aleación, primero se calculan por separado los valores para sendas fases como indica la Ecuación 4.16 [20]:

$$\dot{\epsilon}_{fase} = \frac{A_{fase}}{T} \exp\left(-\frac{Q_{fase}}{R \cdot T}\right) \sigma_{eff}^{n_{fase}} \quad (4.16)$$

donde T es la temperatura en K y los parámetros A_{fase} , $\frac{Q_{fase}}{R}$ y n_{fase} de cada fase se muestran en la Tabla 4.7.

Fase α	Fase β
si $\sigma_{eff} < 1500$ $A_{\alpha} = 6,78 \cdot 10^3 \frac{K}{MPa \cdot s}$ $\frac{Q_{\alpha}}{R} = 15996K$ $n_{\alpha} = 1$	Fase β pura $A_{\beta} = 1,23 \cdot 10^3 \frac{K}{MPa^{4,3} \cdot s}$ $\frac{Q_{\beta}}{R} = 17088K$ $n_{\beta} = 4,3$
si $\sigma_{eff} \geq 1500$ $A_{\alpha} = 2,28 \cdot 10^3 \frac{K}{MPa^4 \cdot s}$ $\frac{Q_{\alpha}}{R} = 23333K$ $n_{\alpha} = 4$	Fase $\alpha +$ Fase β $A_{\beta} = 5,01 \cdot 10^2 \frac{K}{MPa^4 \cdot s}$ $\frac{Q_{\beta}}{R} = 15000K$ $n_{\beta} = 4$

Tabla 4.7: Parámetros de velocidad de deformación de termofluencia para cada fase presente en la aleación Zr-1 %Nb [20]

Una vez calculadas las velocidades de deformación de termofluencia de cada fase se realiza un promedio pesado de cada velocidad en función de la fracción de volumen W_{fase} de cada fase, como indica la Ecuación 4.17.

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_{\alpha} \cdot w_{\alpha} + \dot{\epsilon}_{\beta} \cdot w_{\beta} \quad (4.17)$$

4.4.3. Criterios de *burst*

Los modelos mecánicos que evalúan la rotura cuentan con condiciones de *burst* tanto para la tensión como para la deformación de la vaina. Se asume que la vaina falla si la tensión circunferencial excede la tensión de rotura (σ_B , Ecuación 4.18) o si la deformación alcanza el criterio de falla de deformación plástica (ε_B , Ecuación 4.19). Se conocen varias correlaciones empíricas para el *burst*, de las cuáles seleccionamos la ley de Rosinger para Zircaloy-4 [21] y la ley de Van Uffelen [22] o la alternativa de Yegorova [19] para el Zr-1 %Nb (ver Tabla 4.8).

Las leyes de termofluencia se encuentran definidas en la Subsección 4.4.2. En la Tabla 4.8, se listan los valores de las constantes involucradas en las ecuaciones de tensión y deformación de *burst* (4.18 y 4.19, respectivamente), donde w_{fO} es la fracción en peso

de oxígeno capturado en las reacciones metal-agua de alta temperatura en los casos de atmósfera de vapor [23].

$$\sigma_B = C_1 e^{-C_2 T} e^{-(C_0 w_{fO})^2} \quad (4.18)$$

$$\varepsilon_B = C_3 T^4 - C_4 T^3 + C_5 T^2 - C_6 T + C_7 \quad (4.19)$$

Tabla 4.8: Valores de constantes para tensión y deformación de *burst*.

Zircaloy	Zr-1 %Nb
$[C_0] = \text{adim}; [C_1] = \text{Pa}; [C_2] = K^{-1}$ $[C_3] = K^{-4}; [C_4] = K^{-3}; [C_5] = K^{-2}; [C_6] = K^{-1}; [C_7] = \text{adim}$	
$C_0 = 1052,6$ $T < 1085 \text{ K}$ $C_1 = 8,3 \times 10^8 \text{ [Pa]}; C_2 = 0,001$ $1085 \text{ K} \leq T \leq 1166 \text{ K}$ $C_1 = 8,3 \times 10^8 + 2,17 \times 10^5 (T - 1085)/81$ $C_2 = 0,001 + 0,002 (T - 1085)/81$ $1166 \text{ K} \leq T \leq 1248 \text{ K}$ $C_1 = 3 \times 10^9 - 7 \times 10^4 (T - 1166)/82$ $C_2 = 0,003$ $T > 1248 \text{ K}$ $C_1 = 2,3 \times 10^9; C_2 = 0,003$	$C_0 = 0$ $T < 1033 \text{ K}$ $C_1 = 1,419 \times 10^9; C_2 = 0,002545$ $1033 \text{ K} \leq T \leq 1176 \text{ K}$ $C_1 = 4,103 \times 10^{14}$ $C_2 = 0,01472$ $T > 1176 \text{ K}$ $C_1 = 2,703 \times 10^8$ $C_2 = 0,002622$
	Coeficientes alternativos $T < 973 \text{ K}$ $C_1 = 1,99522 \times 10^9$ $C_2 = 0,002622$ $973 \text{ K} \leq T \leq 1176,44 \text{ K}$ $C_1 = 2,99522 \times 10^{12}$ $C_2 = 0,00952232$ $T > 1176,44 \text{ K}$ $C_1 = 1,41573 \times 10^9$ $C_2 = 0,00301426$
$940 \text{ K} \leq T \leq 1200 \text{ K}$ $C_3 = 1,587979 \times 10^{-9}$ $C_4 = 6,692798 \times 10^{-6}$ $C_5 = 1,053049 \times 10^{-2}; C_6 = 7,331051$ $C_7 = 1906,17$ $1200 \text{ K} < T < 1700 \text{ K}$ $C_3 = 0; C_4 = 1,67939 \times 10^{-8}$ $C_5 = 6,23050 \times 10^{-5}$ $C_6 = 7,360497 \times 10^{-2}$ $C_7 = 28,1199$ $T \geq 1700 \text{ K}$ $C_3 = C_4 = C_5 = C_6 = 0; C_7 = 0,544589$	$C_3 = 0$ $973 \text{ K} \leq T \leq 1108 \text{ K}$ $C_4 = -2,08674 \times 10^{-7}$ $C_5 = -6,7244 \times 10^{-4}$ $C_6 = -0,717577$ $C_7 = -252,941$ $1108 \text{ K} < T < 1473 \text{ K}$ $C_4 = 0; C_5 = 9,42895 \times 10^{-6}$ $C_6 = 0,0243805; C_7 = 15,8911$ $T \geq 1473 \text{ K}$ $C_4 = C_5 = C_6 = 0$ $C_7 = 0,44$

Referencias

- [1] K. G. Field, M. A. Snead, Y. Yamamoto y K. A. Terrani. *Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications*. ORNL/SPR-2018/905, 2018.
- [2] C. Kim, C. Tang, Y. Maeng, M. Grosse y M. Steinbrueck. “Oxidation kinetics of nuclear-grade FeCrAl alloys in steam in the temperature range 600-1500°C”. *TopFuel 2021* (2021).
- [3] G. Pastore, K. A. Gamble y J. D. Hales. *Modeling Benchmark for FeCrAl Cladding in the IAEA CRP ACTOF: FeCrAl-C35M Material Models and Benchmark Cases Specifications*. Inf. téc. INL/EXT-17-43695-Rev000. Idaho National Lab. (INL), 2017.
- [4] Z. T. Thompson, K. A. Terrani e Y. Yamamoto. *Elastic Modulus Measurement of ORNL ATF FeCrAl Alloys*. Inf. téc. ORNL/TM-2015/632. Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory, 2015, pág. 17.
- [5] Y. Yamamoto, B. A. Pint, K. A. Terrani, K. G. Field, Y. Yang y L. L. Snead. “Development and property evaluation of nuclear grade wrought FeCrAl fuel cladding for light water reactors”. *Journal of Nuclear Materials* 467 (2015), págs. 703-716. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.10.019.
- [6] K. A. Terrani, T. M. Karlsen e Y. Yamamoto. *Input Correlations for Irradiation Creep of FeCrAl and SiC Based on In-Pile Halden Test Results*. Inf. téc. ORNL/TM-2016/191. Oak Ridge National Lab. (ORNL), Oak Ridge, TN (United States), 2016. DOI: 10.2172/1259428.
- [7] C. P. Massey, K. A. Terrani, S. N. Dryepondt y B. A. Pint. “Cladding burst behavior of Fe-based alloys under LOCA”. *Journal of Nuclear Materials* 470 (2016), págs. 128-138. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.12.018.
- [8] KANTHAL. *APMT Tube Datasheet*. <https://www.kanthal.com/en/products/material-datasheets/tube/kanthal-apmt/>. 2021.
- [9] M. Niffenegger y K. Reichlin. “The proper use of thermal expansion coefficients in finite element calculations”. *Nuclear Engineering and Design* 243 (2012), págs. 356-359.
- [10] IAEA. *Analysis of Options and Experimental Examination of Fuel for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance*. Inf. téc. IAEA-TECDOC-1921. International Atomic Energy Agency (IAEA), 2020.
- [11] M. Kinoshita y M. Ichikawa. “Fuel rod deformation code FEMAXI-II and its application”. *Nuclear Engineering and Design* 56.1 (1980), págs. 49-56. DOI: 10.1016/0029-5493(80)90167-3.
- [12] *MATPRO-Version 11: a handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior*. Inf. téc. NUREG/CR-0497; TREE-1280. Idaho National Engineering Lab., Idaho Falls (USA), 1979. DOI: 10.2172/6442256.
- [13] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. EEUU: Technical Information Center, Office of Public Affairs Energy Research y Development Administration, 1976.
- [14] 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* 374.1 (2008), págs. 32-43. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.06.020.
- [15] Z. Ma, K. Shirvan, Y. Wu y G. H. Su. “Numerical investigation of ballooning and burst for chromium coated zircaloy cladding”. *Nuclear Engineering and Design* 383 (2021), pág. 111420. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2021.111420.

- [16] M. Wagih, B. Spencer, J. Hales y K. Shirvan. “Fuel performance of chromium-coated zirconium alloy and silicon carbide accident tolerant fuel claddings”. *Annals of Nuclear Energy* 120 (2018), págs. 304-318. DOI: 10.1016/j.anucene.2018.06.001.
- [17] U. Holzwarth y H. Stamm. “Mechanical and thermomechanical properties of commercially pure chromium and chromium alloys”. *Journal of Nuclear Materials* 300.2 (2002), págs. 161-177. DOI: 10.1016/S0022-3115(01)00745-0.
- [18] J. R. Stephens y W. D. Klopp. “High-temperature creep of polycrystalline chromium”. *Journal of the Less Common Metals* 27.1 (1972), págs. 87-94. DOI: 10.1016/0022-5088(72)90108-7.
- [19] L. Yegorova et al. *Data Base on the Behavior of High Burnup Fuel Rods with Zr-1 %Nb Cladding and UO₂ Fuel (VVER Type) under Reactivity Accident Conditions: Description of Test Procedures and Analytical Methods*. Inf. téc. NUREG/IA-0156, Volume 2, IPSN 99/08-2, NSI RRC KI-2179. NRC, 1999, pág. 248.
- [20] D. Kaddour, S. Frechinet, A. F. Gourgues, J. C. Brachet, L. Portier y A. Pineau. “Experimental determination of creep properties of Zirconium alloys together with phase transformation”. *Scripta Materialia* 51.6 (2004), págs. 515-519. DOI: 10.1016/j.scriptamat.2004.05.046.
- [21] F. J. Erbacher, H. J. Neitzel, H. Schmidt, K. Wiehr y H. Rosinger. “Burst Criterion of Zircaloy Fuel Claddings in a Loss-of-Coolant Accident”. *Zirconium in the Nuclear Industry*. ASTM International, 1982, págs. 271-283. DOI: 10.1520/STP37058S.
- [22] P. Van Uffelen, C. Győri, A. Schubert, J. van de Laar, Z. Hózer y G. Spykman. “Extending the application range of a fuel performance code from normal operating to design basis accident conditions”. *Journal of Nuclear Materials*. Advances in Nuclear Materials: Processing, Performance and Phenomena 383.1 (2008), págs. 137-143. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2008.08.043.
- [23] 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. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2017.02.015.

5. Validación

5.1. Validación con experimentos de pastillas de óxidos mixtos de Torio

5.1.1. Experimentos

La bibliografía sobre ensayos con torio para los que se haya medido la liberación de gases de fisión es escasa. En la década del 70 se realizaron 59 experimentos de liberación de gases de fisión en la mezcla de óxidos de torio y uranio como muestra **Goldberg et al** [1, 2] pertenecientes al Programa de Desarrollo de Reactores Reproductores de Agua Liviana (LWBR Development Program, en inglés), aunque sólo 5 de esos experimentos estaban suficientemente detallados como para ser reproducidos mediante el cálculo. Las características de las barras combustibles que se podían reproducir se resumen en la Tabla 5.1 donde las longitudes están en *cm* y los demás factores en %.

Barra	79-442	79-506	79-349	79-375	79-405
% w UO_2	6,6	17,1	20,0	30,0	20,0
% Densidad Teórica	96,0	95,3	95,0	92,0	94,0
Diámetro de la pastilla	0,52832	1.17348	1.65608	1.64	1.65
Largo de la columna de pastillas	76,2	91,44	8,128	91,44	91,44
<i>Gap</i>	0,018034	0,017526	0,01016	0,03048	0,01524
Diámetro externo de la vaina	0,6477	1,33858	1,81864	1.82118	1,82118
FGR medido	0,5	2,0	1,8	8,0	15,0

Tabla 5.1: Características de las barras combustibles estudiadas en el Programa de Desarrollo de LWBR [1, 2]

Alternativamente, se encontraron experimentos de barras irradiadas en el reactor PWR KWO, hasta un quemado de 40 MWd/kgHM como muestra **Sommers et al** [3, 4]. Las pastillas combustibles se fabricaron en el Joint Research Center-Institute for Transuranium Elements (JRC-ITU) en Karlsruhe con una concentración de PuO_2 de 3% w. El apilamiento de pastillas tenía una longitud activa total de 206 mm. La parte superior de la barra presenta un *plenum* y un resorte de 47 mm de longitud nominal [3]. Algunas de esas barras se instrumentaron con termocuplas ubicadas en la posición central dentro de un tubo guía.

Por último se encontró otro grupo de barras irradiadas en el reactor BR-2 entre 2004 y 2006, de las cuales una tuvo un segundo ciclo de irradiación entre 2012 y 2015. Dos de ellas se equiparon con una termocupla para medir la temperatura central del combustible, así también con un sensor de presión para conocer la liberación de gases de fisión. A estas barras se las nombró como BI y HI. Otras dos barras no fueron instrumentadas sino que fueron retiradas del reactor para mediciones intermedias [5]. Una de estas barras no instrumentadas se irradiaron en un segundo ciclo mencionado entre 2012 y 2015 y fue llamada HN. Los detalles de las condiciones de irradiación incluyendo la posición dentro del reactor, la descripción geométrica de las barras y la caracterización química del combustible se pueden obtener en [5]. Cabe destacar que en la bibliografía de este experimento encontramos datos de liberación de gases de fisión sólo para las barras BI y HN. La composición de la barra BI es de 7,87 %w de PuO_2 , y la de las barras HI y HN es de 12,76 %w del mismo óxido.

Cabe destacar que para todos los experimentos mencionados en esta sección, las vainas son de Zry.

5.1.2. Simulaciones

En base a las modificaciones descritas, se simularon los experimentos detallados en la Subsección 5.1.1 previa con el código DIONISIO. Dado que el proceso de difusión de los gases de fisión a través del combustible depende íntimamente de la temperatura del mismo, para los casos en que los experimentos contaban con termocuplas que registraban la temperatura central, se compararon las predicciones simuladas con los valores medidos. En la Figura 5.1, se puede observar la correspondencia entre los valores de temperatura calculados por DIONISIO y los valores experimentales para las barras instrumentadas HI y BI irradiadas en el reactor BR-2.

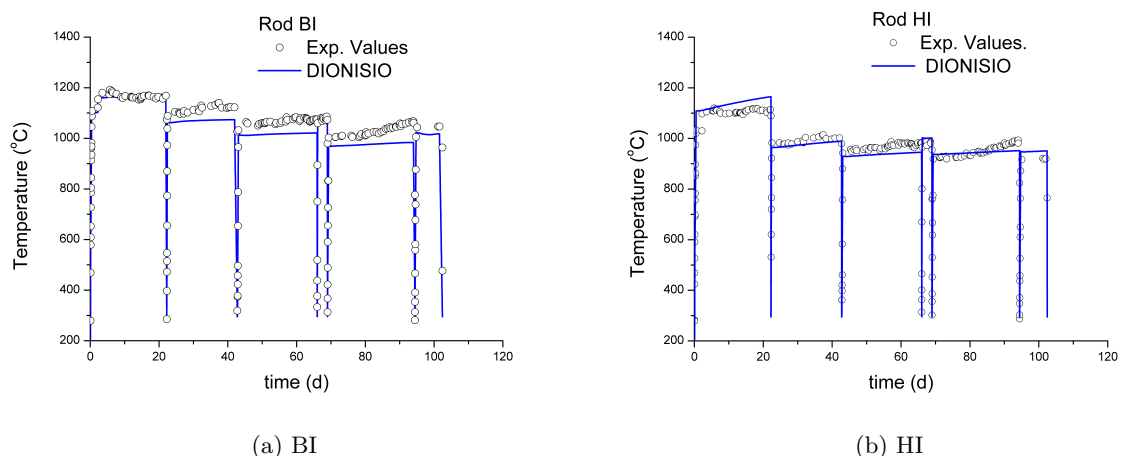


Figura 5.1: Comparación de la temperatura central de la pastilla medida y simulada para las barras BI y HI

En la Figura 5.2 se observa la comparación entre los datos experimentales y los calcu-

lados en DIONISIO de las medidas de gas liberado. Se encuentra dibujada la recta ideal donde los valores experimental y calculado coincidirían y dos rectas con línea punteada que indican un apartamiento entre el valor experimental de un 15 % tanto por exceso como por defecto. Se puede observar que hay una buena correlación entre los datos calculados y los datos experimentales dado que 4 de los 8 experimentos se encuentran dentro de los valores aceptables y 3 de los que no están dentro del rango delimitado por las dos líneas punteadas se encuentran muy cercanos a ellas. Para los valores que no entran en la franja del $\pm 15\%$ es necesario destacar que son valores de FGR (del inglés *Fission Gas Release*) menores a 5 %. Dado que el valor nominal del porcentaje es cercano a cero, el error relativo es muy alto, algo que es esperable para cantidades tan pequeñas. Al ser el valor del FGR tan bajo es más difícil dar con el precisamente en términos de valores relativos. Aún así, los resultados de los cálculos están próximos a los valores experimentales. Esta dispersión en los datos simulados ingresa dentro de las variaciones esperables en este tipo de modelos como muestra Pastore et al. [6], sin embargo, el modelo debe ser contrastado contra más datos experimentales a ser obtenidos en el futuro.

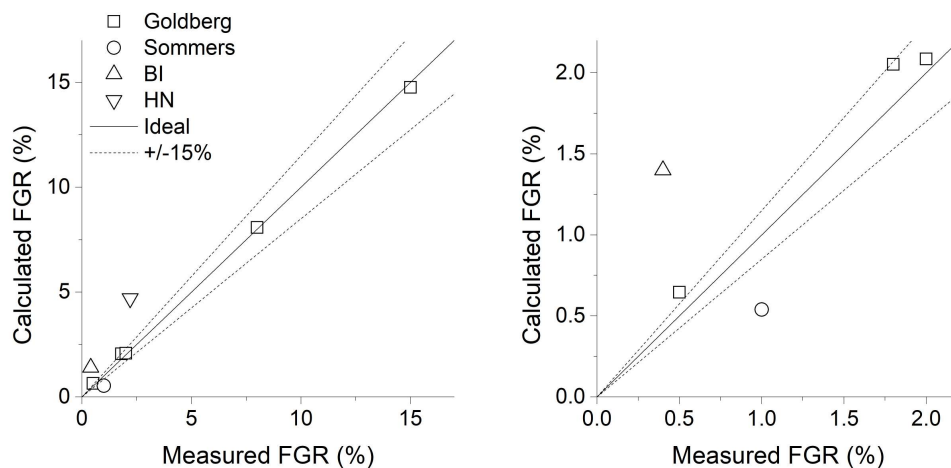


Figura 5.2: Comparación entre la liberación de gases de fisión medidos y calculados para combustibles de óxidos mixtos

Los cambios dimensionales de la vaina se monitorearon experimentalmente entre cada ciclo de irradiación, extrayendo la barra combustible del EC de MOX para su posterior medición. El comportamiento de la vaina es muy similar al obtenido en combustible de UO_2 . En la Figura 5.3 se muestra una comparación entre las predicciones de DIONISIO y los datos medidos.

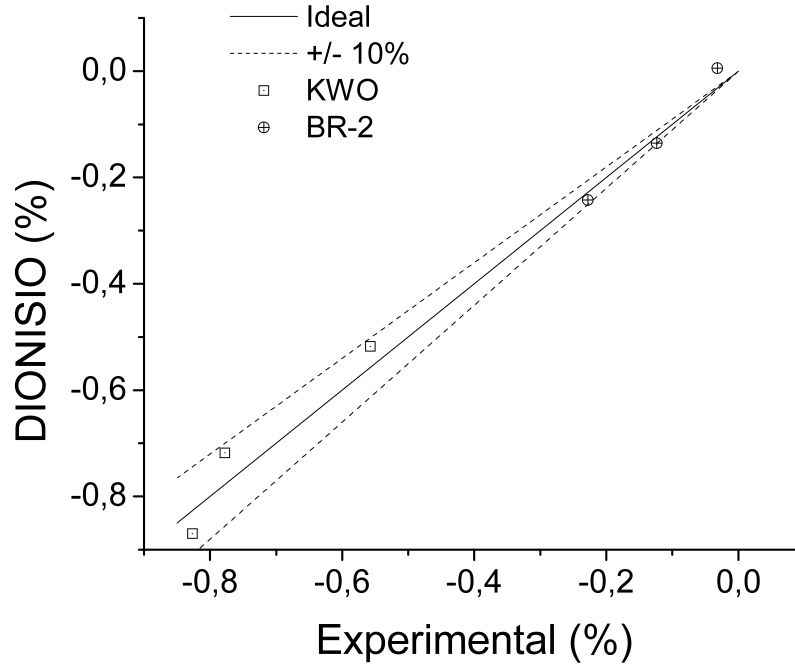


Figura 5.3: Cambio de diámetro medido de la barra corta de vaina de Zry-4 y pastilla (Th,Pu)O₂ para los experimentos KWO y BR-2 comparados con las predicciones del modelo mecánico de DIONISIO

5.2. Validación con experimentos de pastillas de dióxidos de Uranio dopado con óxido de Cromo

5.2.1. Experimento IFA 716

El experimento IFA 716 [7] consta de 6 barras combustibles instrumentadas, fabricadas de distintos materiales, las cuales son sometidas a una historia de potencia dentro del reactor Halden. La barra 1 y la barra 6 están hechas con pastillas de UO_2 dopadas con Cr_2O_3 con distintas concentraciones (1600 ppm y 1000 ppm respectivamente) y vainas de Zry-4; estas barras son las de interés en este trabajo. La instrumentación de cada barra está compuesta por un transductor para medir la presión interna, una termocupla en una pastilla anular en la zona superior para estimar la temperatura central de la pastilla, y un extensómetro que mide la elongación de la columna de pastillas. Tanto los transductores como los extensómetros fallaron después de cierto tiempo de medición en distintos momentos [8]. Por otro lado, se midió también la liberación de gas de fisión final de la barra 6 por pinchado; la medición de pinchado de la barra 1 falló debido a que los gases se escaparon durante el procedimiento [9]. Las características de fabricación de la barra se muestran en la Tabla 5.2.

Para simular las barras del experimento IFA 716, se dividió el dominio en tres sectores y se consideró que todas las pastillas eran macizas sin agujero central. Para considerar la termocupla que en el experimento se introducía en el interior de una serie de pastillas

		Barra 1	Barra 6
Dopado	[ppm]	1600	1000
Tamaño de grano	[μm]	70	59
Diámetro externo de la vaina	[mm]	10,75	10,75
Diámetro interno de la vaina	[mm]	9,30	9,30
Diámetro de la pastilla	[mm]	9,12	9,12
Largo de la pastilla	[mm]	11,5	11,1
Enriquecimiento	[w %]	4,90	4,89
Porcentaje de densidad teórica	[%]	96,0	96,2
Densidad	[g/cm ²]	10,50	10,53
Volumen del dishing	[mm ³]	11,13	12,81

Tabla 5.2: Datos de fabricación de las barras 1 y 6 del experimento IFA 716 [8]

anulares, se eligió el sector más alto siendo que el código simula todas pastillas macisas, por lo que la temperatura central obtenida en ese sector aproxima a la temperatura en la termocupla. Los resultados obtenidos se muestran en la Figura 5.4 y Figura 5.5.

Tanto para la barra 1 como la barra 6, la temperatura central calculada por DIONISIO reproduce la temperatura medida hasta los 500 y 600 días de cada experimento respectivamente, como se observa en el gráfico superior izquierdo de cada figura. Luego se produce una sobrestimación del 10 % para la primera barra y del 15 % para la segunda. Por otro lado, la presión se sobreestimó entre un 5 % y un 15 % (gráfico superior derecho de ambas figuras). Por su parte, la elongación de la columna de pastillas fue sobrestimada en ambas barras ampliamente (gráfico inferior izquierdo). Para la barra 6 la liberación de gases de fisión se sobreestimó ligeramente, llegando a ser un resultado conservador. Como mencionamos previamente, la medición experimental de FGR de la barra 1 falló por lo que no tenemos el dato.

Estudiando estos resultados se llegó a la conclusión que las discrepancias en los resultados de elongación y presión se deben a que no está especificada la geometría del *dishing*, los datos de la bibliografía solo brindan el volumen y no el radio y la altura del mismo.

5.2.2. Experimento IFA 677

El experimento IFA 677 [10] consta de 6 barras combustibles instrumentadas fabricadas de distintos materiales las cuales son sometidas a una historia de potencia dentro del reactor Halden. La barra 1 y la barra 5 están hechas con pastilla de UO_2 dopadas con Cr_2O_3 y Al_2O_3 con distintas concentraciones y vainas de Zry-4; estas barras son las de interés en este trabajo. La instrumentación de cada barra está compuesta por un transductor para medir la presión interna, dos termocuplas en pastillas anulares en la zona superior e inferior de la barra para estimar la temperatura central de la pastilla, y un extensómetro que mide la elongación de la columna de pastillas. La medición de la liberación de gases de fisión fue calculada a partir de los datos medidos de la presión

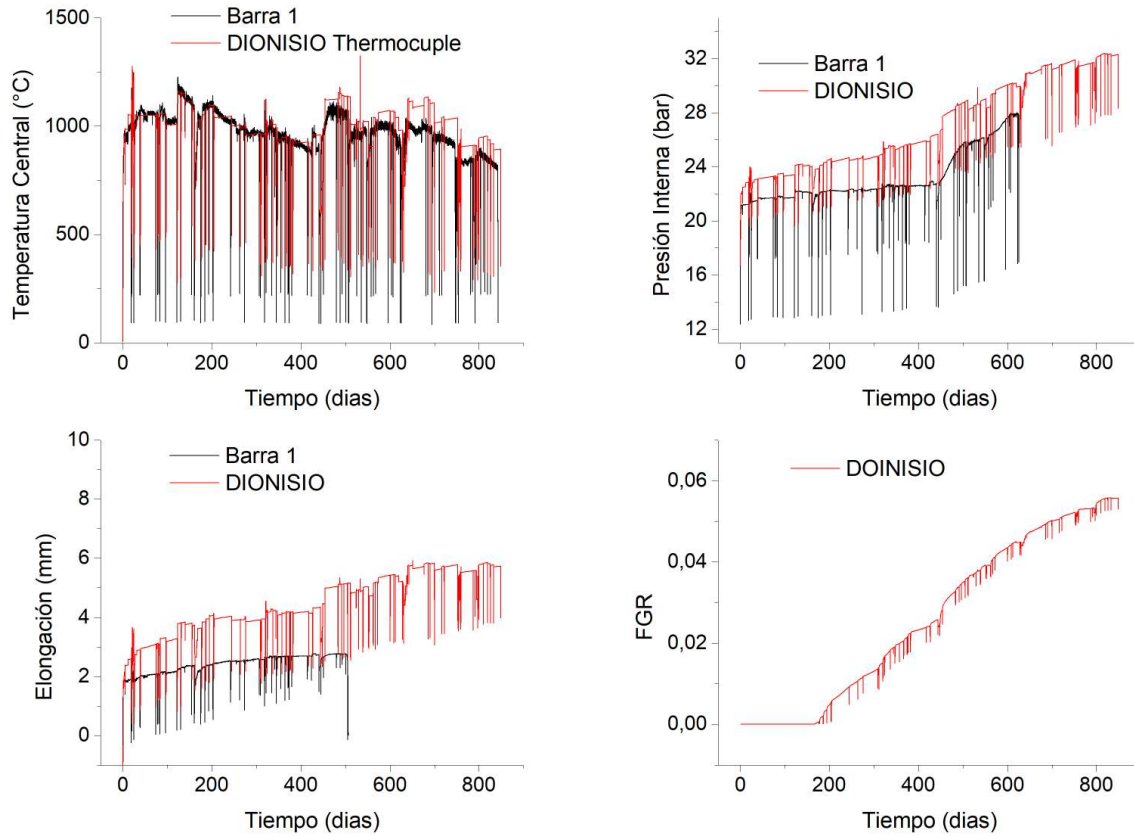


Figura 5.4: Resultados de la barra 1 del experimento IFA 716

interna. Las características de fabricación de la barra se muestran en la Tabla 5.3.

Para simular las barras del experimento IFA 677, se dividió el dominio en tres sectores axiales y se consideró que todas las pastillas eran macizas sin agujero central. Las pastillas de los experimentos donde se ubican las termocuplas eran anulares. La temperatura del sector más alto simuló la temperatura de la termocupla superior y la del más bajo, la de la inferior. De esta forma, la temperatura central obtenida para ambos sectores aproxima la temperatura en cada termocupla. Los resultados obtenidos se muestran en la Figura 5.6. Para la barra 5 se puede observar que las temperaturas calculadas reproducen las temperaturas del experimento como se observa en la figura superior izquierda. Por su parte, a su derecha se observa la presión interna para ambas barras. La barra 5 es reproducida por los cálculos. Sin embargo, para la barra 1, el valor experimental discrepa con el valor calculado por DIONISIO. Dado cierto tiempo, este valor es mayor que el valor de la barra 5, que no se condice con la concentración de dopantes que es menor en la barra 5. Entendiendo que a mayor concentración, la liberación de gases de fisión debería ser menor, suponemos una falla del dispositivo de medición. Esto se ve expresado en una liberación repentina de gases de fisión en la barra 1, como se ve en el gráfico inferior derecho, que permanece por debajo del valor experimental de la barra 5 hasta los 13 MWd/kgUO_2 . Finalmente, la elongación de la columna de pastillas fue prácticamente reproducida para la barra 1,

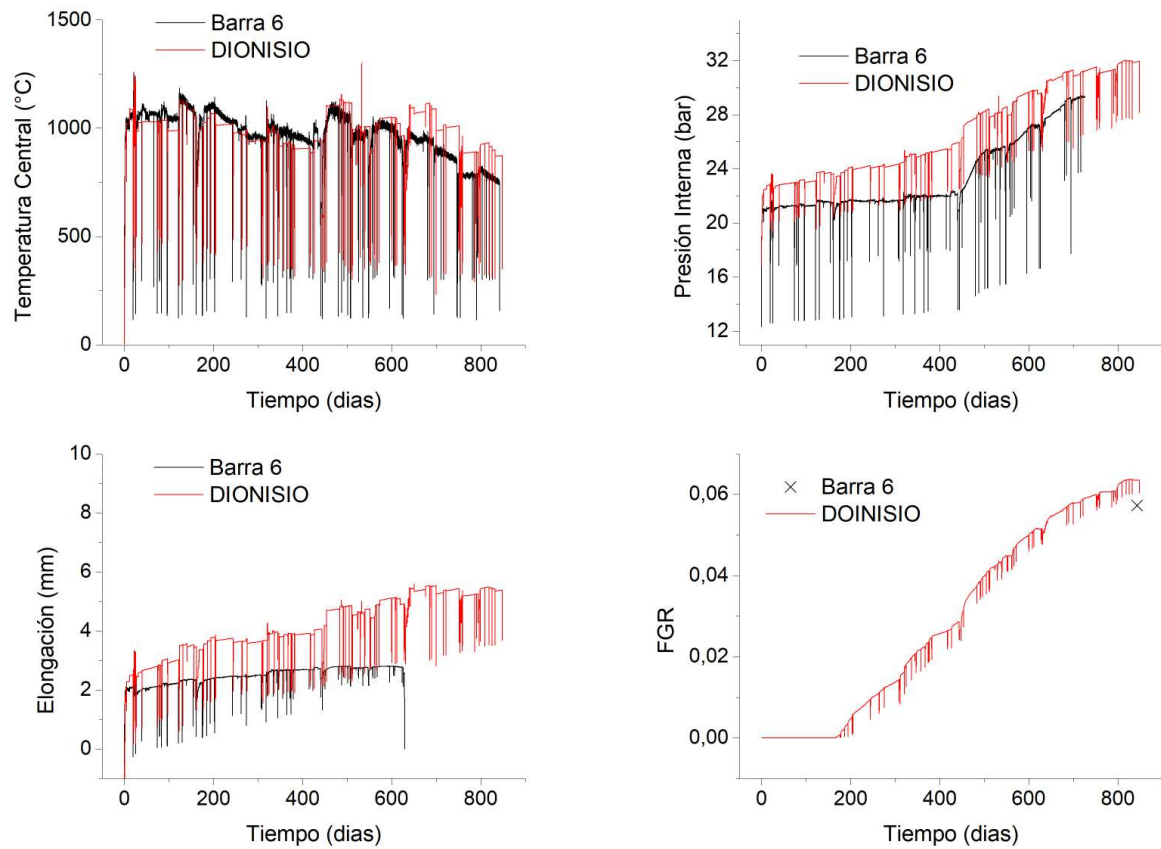


Figura 5.5: Resultados de la barra 6 del experimento IFA 716

a excepción de un primer aumento repentino a los primeros 100 días de irradiación. La barra 5 fue reproducida entre los 100 y los 250 días; antes de ese tiempo fue subestimada, y luego, sobrestimada.

		Barra 1	Barra 5
Dopado Cr_2O_3	[ppm]	900	500
Dopado Al_2O_3	[ppm]	200	200
Tamaño de grano	[μm]	56	45
Diámetro externo de la vaina	[mm]	10,75	10,75
Diámetro interno de la vaina	[mm]	9,30	9,30
Diámetro de la pastilla	[mm]	9,13	9,13
Largo de la pastilla	[mm]	11,0	11,0
Enriquecimiento	[w %]	4,94	4,91
Porcentaje de densidad teórica	[%]	97,5	97,6
Densidad	[g/cm ³]	10,69	10,70
Diámetro del dishing	[mm]	5	5
Profundidad del dishing	[mm]	0,3	0,3

Tabla 5.3: Datos de fabricación de las barras 1 y 5 del experimento IFA 677 [10]

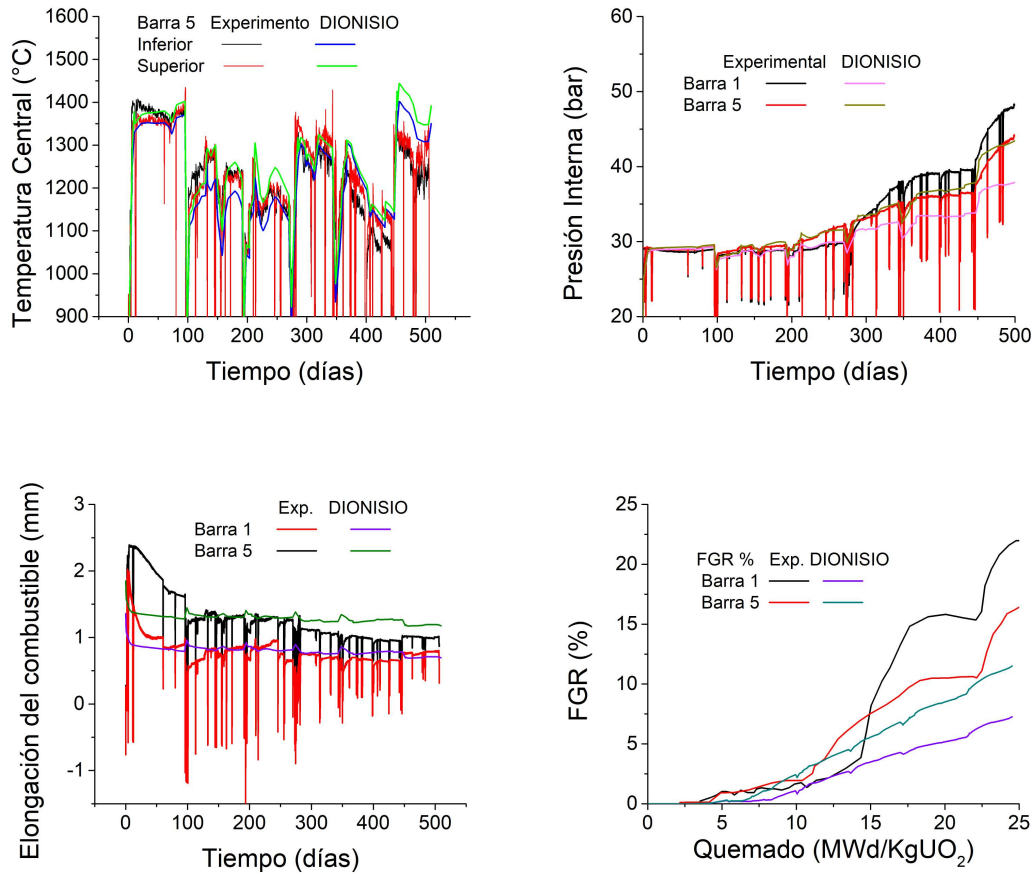


Figura 5.6: Resultados de la simulación del experimento IFA 677

5.2.3. Experimento SCIP II

El experimento SCIP II [11] consistió en dos barras con pastillas dopadas con Cr con una irradiación de base en el reactor OKG2 hasta un quemado medio de 26 (barra Aa1) y

28 MWd/kgU (barra Aa2). Luego fueron llevados al reactor de Halden para ser sometidas a rampas de potencia. Antes y después de las rampas se midió por perfilometría el diámetro externo.

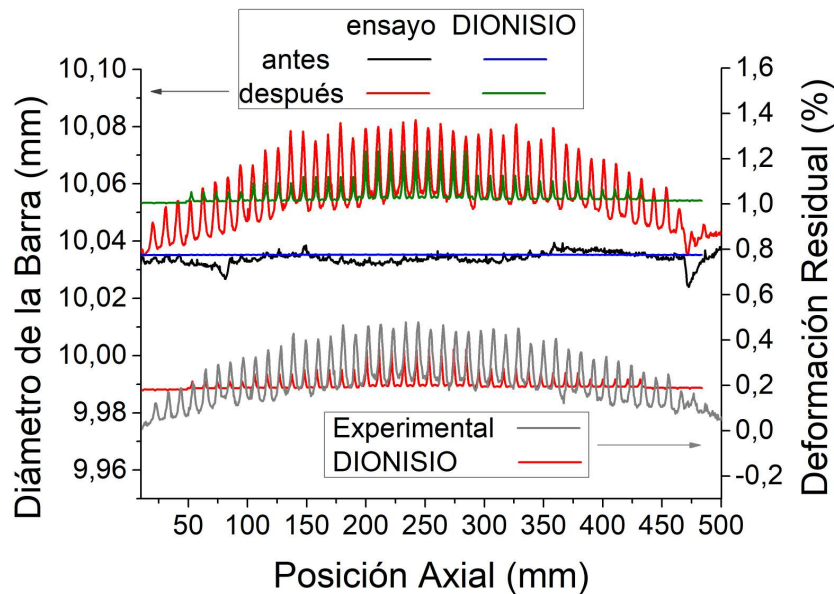


Figura 5.7: Perfilometría medida y calculada del experimento SCIP II

Los resultados del experimento SCIP II se representan en la Figura 5.7, comparando los resultados de DIONISIO con las mediciones experimentales [11]. Se puede observar que toda la vaina se deformó un 0,2% como mínimo y que se logra captar algunos de los picos del crecimiento del diámetro de la vaina reproduciendo el efecto bambú.

5.3. Validación de vainas de FeCrAl: *benchmarks* de intercomparación de códigos y experimentos

5.3.1. *Benchmark* para condiciones normales de operación

Para comparar el comportamiento de las aleaciones de zirconio frente a aleaciones de FeCrAl en condiciones normales, se propuso un *benchmark* con una historia de potencia simplificada como se muestra en la Figura 5.8 donde la potencia lineal en estado estacionario es de 250 W/cm [12]. Se ejecutó la misma historia para dos barras combustibles con diez pastillas de UO_2 cada una y vainas, una de Zircaloy-4 (Zry-4) y otra de FeCrAl. Dado que la vaina de FeCrAl tiene mayor resistencia y mayor sección de captura neutrónica que el Zry se disminuyó el espesor de la misma y se mantuvo el tamaño del *gap* aumentando el diámetro de la pastilla. Los diámetros de la vaina interno/externo fueron para el Zry-4 8,35/9,5 mm y para el FeCrAl 8,73/9,5 mm. Por su parte, los diámetros de las pastillas eran 8,19 mm para el Zry-4 y 8,57 mm para el FeCrAl. La longitud de las pastillas para ambas configuraciones fue de 11,86 mm [12].

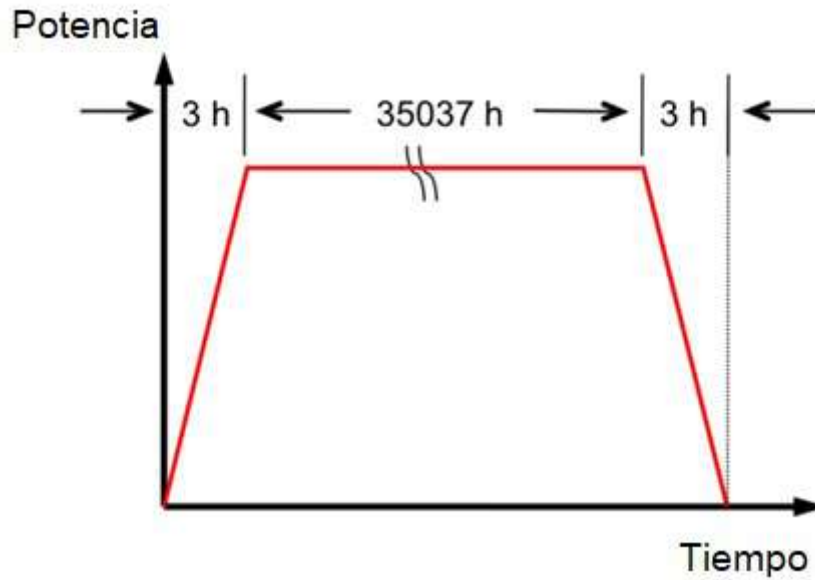


Figura 5.8: Historia de potencia para el caso de *benchmark* en operación normal [12]

Los resultados del cálculo del *benchmark* se presentan en la Figura 5.9. Se puede observar que el contacto en el FeCrAl se produce mucho tiempo después que en el Zry. Se puede observar que el tamaño del *gap* se vuelve cero al menos 15.000 horas después y que la tensión circunferencial aumenta también después por lo que la vaina es menos tiempo exigida. En la temperatura central también se observa el cambio de pendiente dando también indicio de esto. Por otro lado, la liberación de gases de fisión final es menor en el FeCrAl que en el Zry, así como también la presión interna y el espesor de óxido. Este último se reduce a prácticamente la mitad para el FeCrAl debido a la diferencia en la cinética de la reacción.

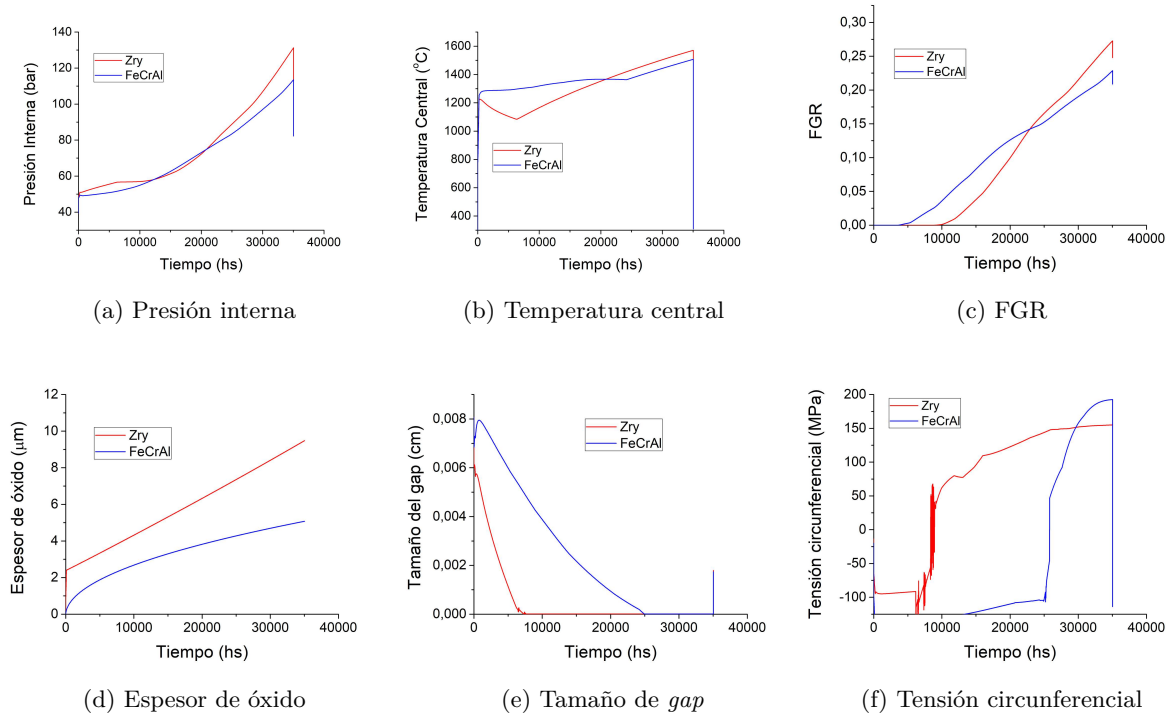


Figura 5.9: Comparación de resultados del *benchmark* entre vainas de Zry-4 y FeCrAl.

5.3.2. Experimentos de fisura sin irradiación

Para estudiar los parámetros de explosión de las vainas en condiciones LOCA en aleaciones de zirconio se diseñaron los experimentos PUZRY [12]. Los mismos se llevaron a cabo por AEKI (*Atomic Energy Research Institute*, Hungría). Consistían en vainas de Zry en un entorno sin irradiación sometidas a un aumento constante de presión hasta generar la explosión de la vaina en condiciones isotérmicas entre 700 y 1200 °C. Los especímenes de ensayo tenían 50 mm de largo, y diámetros interno y externo de 9,3 y 10,75 mm. Las mismas eran presurizadas con Ar para evitar la corrosión. En la Figura 5.10 se puede observar el dispositivo experimental del ensayo PUZRY.

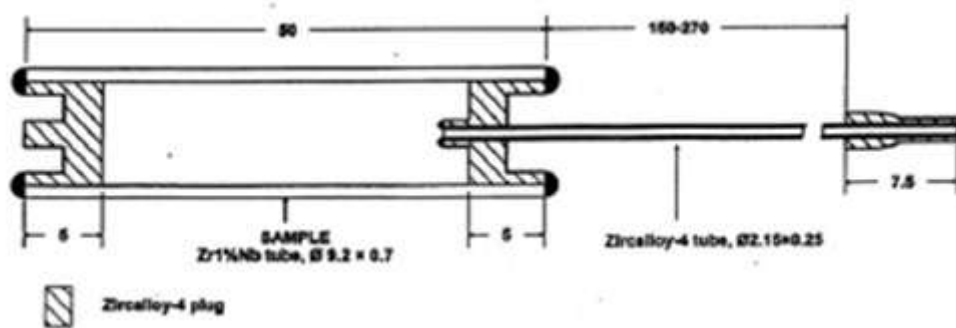


Figura 5.10: Dispositivo experimental de ensayos PUZRY [12]

Con el fin de estudiar los parámetros de explosión de vainas de FeCrAl en condiciones LOCA, se simuló los experimentos PUZRY suponiendo que las vainas de los mismos

eran de FeCrAl en vez de Zry como eran en el experimento original. Para tener en cuenta los parámetros de diseño de las vainas FeCrAl se disminuyó el espesor del tubo aprovechando la mayor resistencia mecánica y buscando disminuir la captura de neutrones. Es así que se convino entre los participantes del proyecto ATF-TS que el diámetro interno sea de 9,98 mm.

Para simular estos experimentos, DIONISIO cuenta con un módulo de ejecución para experimentos sin irradiación. Este módulo cuenta con una malla tridimensional con elementos cohesivos. En la Figura 5.11 se puede observar que la mayoría de los resultados presentan un error del 10 %.

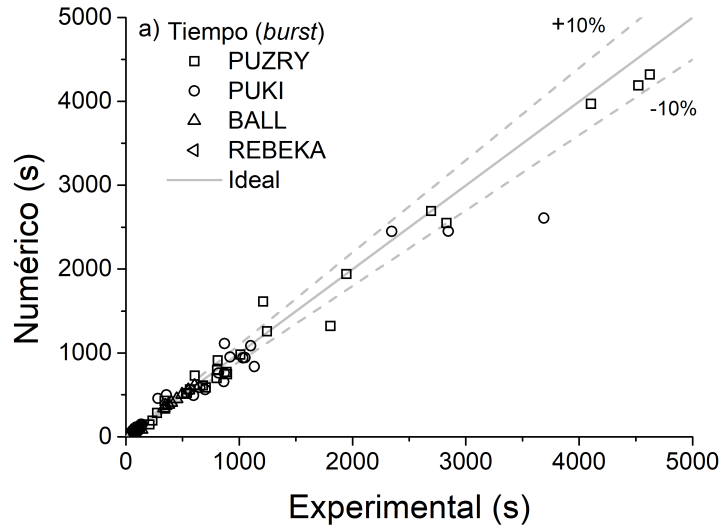


Figura 5.11: Resultados de tiempos de explosión de distintos experimentos sin irradiación

Para obtener una fórmula analítica para la tensión de explosión (*burst*) de vainas combustibles, así como la deformación denominada *ballooning*, se realizaron una serie de experimentos en diversos laboratorios del mundo. En particular, la serie de experimentos PUZRY (vainas de Zry) y PUKI (vainas de Zr-1 %Nb) fueron realizados en el Instituto AEKI [13]. Dichos experimentos consisten en vainas de unos pocos centímetros de longitud sometidas a condiciones de temperatura fijas, incrementando la presión interna a velocidades constantes o, por el contrario, presiones fijas en donde se aumentaba la temperatura gradualmente hasta alcanzar la explosión de las muestras. Para simular estos ensayos, se utilizan elementos finitos cohesivos que son elementos que sirven para simular una interfase entre dos superficies. Se caracterizan por tener una ley cohesiva que simula la resistencia a la separación de las dos superficies. Para simular la fisura, la zona cohesiva es insertada en el punto del dominio que alcance la condición de falla por tensión o deformación, en el instante que se produce la rotura, permitiendo reproducir el avance de la fisura en las fracciones de segundo finales del ensayo. En la Figura 5.12 se muestran resultados para la presión y el tiempo de *burst* en función de la temperatura para algunos casos representativos comparados con las mediciones experimentales. Las curvas siguen la disminución esperada de tiempo y presión finales a medida que aumenta la temperatura

del caso, tal como predice la teoría [14], mostrando un buen acuerdo con los resultados experimentales. En la Figura 5.13 se puede visualizar una fotografía del caso 30 de la serie PUZRY tomada luego del ensayo [13] junto con una imagen del estado final de la simulación, representando la tensión circunferencial de la vaina en MPa en color. No se muestran los elementos cohesivos que han dado lugar a una fisura macroscópica para poder observar la falla en la probeta.

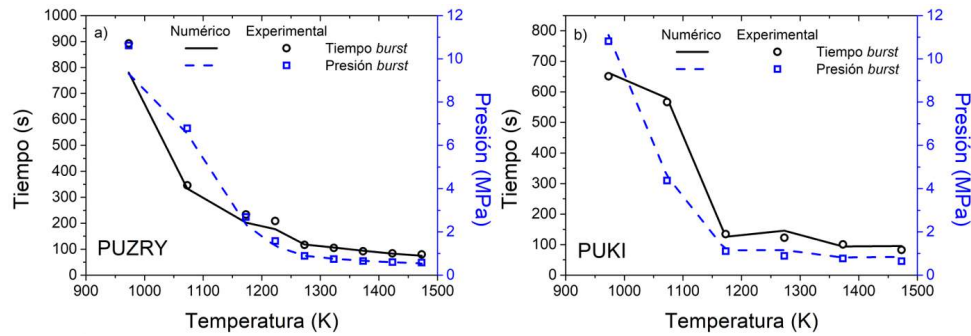


Figura 5.12: Tiempo y presión de *burst* en función de la temperatura para PUZRY (a) y PUKI (b).

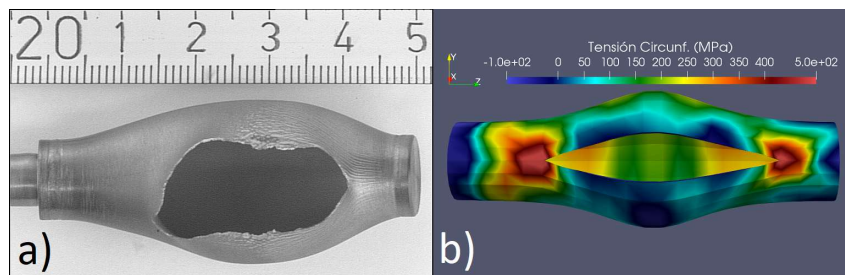


Figura 5.13: Visualización de PUZRY 30. a) Fotografía después del ensayo. b) Estado final de la simulación.

En la Tabla 5.4 se observan los resultados de las simulaciones de los estudios SET (*Separated Effect Tests* por sus siglas en inglés) para FeCrAl y los datos experimentales obtenidos de los PUZRY de Zry. Se puede observar que para 900 y 1000°C tanto el tiempo como la presión de explosión fueron mayores para los valores calculados mostrando la mejora de las vainas ATF. A 800°C en cambio, ambos cálculos dieron por debajo de los valores experimentales. Se puede concluir que las vainas tienen comportamientos similares en estas condiciones.

Experimento	Temperatura	FeCrAl Calculado			Zry Experimental	
		Tiempo de Explosión	Presión de Explosión	Deformación Circunferencial Máxima	Tiempo de Explosión	Presión de Explosión
	[°C]	[s]	[MPa]	[%]	[s]	[MPa]
PUZRY-30	800	264,36	7,0525	50,559	275,7	7,251
PUZRY-18	900	270,52	3,2136	2,699	233,7	2,689
PUZRY-8	1000	148,28	12,27	3,323	116,7	0,890

Tabla 5.4: Resultados de ensayos de efecto separado (SET) para FeCrAl comparado con datos experimentales de Zry

5.3.3. QUENCH-19: Experimento termohidráulico sin irradiación

Para simular la termohidráulica de un accidente LOCA, el Instituto de Tecnología Karlsruhe (KIT) diseñó una serie de experimentos en que se estudian las condiciones de daño severo en las vainas de los elementos combustibles y la generación de hidrógeno [15]. El experimento consistía en un manojo de 24 barras simuladas de FeCrAl que contaban con una resistencia interna. El mismo era sometido a la convección forzada de Ar y vapor sobrecalentado que reaccionaba con la vaina produciendo óxido e hidrógeno. Las vainas medían 2,28 m de longitud y presentaban una zona calentada con la resistencia de poco más de 1 m. El dispositivo contaba con varias termocuplas ubicadas sobre las barras a diferentes alturas de las mismas. También contaba con un medidor de hidrógeno a la salida del flujo del Ar y el vapor que arrastraban el producto de la reacción con la vaina. Mediante un condensador extraían el vapor sobrecalentado, y quedaba el Ar y el hidrógeno por lo que el sistema de medición analizaba la mezcla binaria de ambos compuestos.

Para simular este experimento se consideró la barra más exigida con su historia de potencia provista en los datos experimentales y se dividió la misma en 10 sectores axiales. La contribución de H_2 de esta barra se multiplicó por el número total de barras del experimento (24). Los resultados de la simulación del experimento mencionado se pueden encontrar en la Figura 5.14. Se puede observar como las diferentes temperaturas de la vaina caen dentro del rango de los resultados experimentales. Sin embargo, la separación entre las curvas es menor a la del resultado experimental. Esto se debe a que DIONISIO simula sólo la barra más exigida y no el manojo de barras disminuyendo así la contribución térmica de las barras laterales. Por otro lado, se puede observar los resultados de la liberación de hidrógeno en dos gráficos a la derecha de la figura, por encima la masa acumulada y por debajo, la cantidad detectada en ese instante. Se puede observar cómo DIONISIO predice tanto la generación como la acumulación de hidrógeno sobrestimando la cantidad total dando un resultado más conservativo.

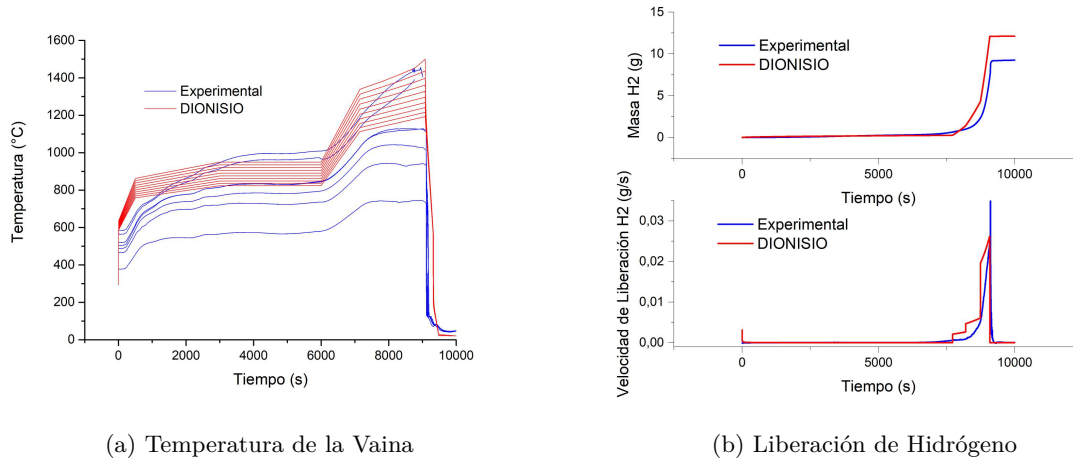


Figura 5.14: Comparación de los resultados del experimento termohidráulico sin irradiación con el cálculo de DIONISIO.

5.4. Aleaciones de Zirconio recubiertas con Cromo

5.4.1. OPZCR: Experimentos de fisura sin irradiación

Para evaluar los efectos separados de las vainas recubiertas, Czech Technical University (CTU) diseñó los experimentos OPZCR de vainas de ZIRLO optimizado con recubrimiento de Cr [16]. Estos experimentos fueron llevados de manera similar a los PUZRYs, aumentando la presión de manera aproximadamente lineal, y observando las presiones de explosión final. Las vainas esta vez eran de 85 mm de largo y sus diámetros interno/externo eran de 7,929/9,085 mm.

En la Tabla 5.5 se pueden observar los resultados de los experimentos SET de vainas recubiertas. La presión de explosión de los OPZCR 1, 4 y 8 presentan un error de menos del 6 %, mientras que el OPZCR 5 presenta un error de un poco menos del 20 %. Cabe destacar, que el experimento 5 rompió a una presión menor que el resto de los experimentos. Es por eso que podemos considerar que el error relativo de ese experimento es más alto. Siguiendo esa consideración podemos decir que DIONISIO reproduce el comportamiento de las vainas recubiertas de manera satisfactoria.

Experimento	Temp.	Vel. Pres.	Calculado			Experimental	
			Tiempo de Explosión	Presión de Explosión	Deform. Circunf. Máxima	Presión de Explosión	Deform. Circunf.
	[°C]	[kPa/s]	[s]	[MPa]	[%]	[MPa]	[%]
OPZCR-1	805	105	66,881	7,1225	83,279	7,29	50,88
OPZCR-4	838	105	58,241	6,2153	69,229	6,13	43,86
OPZCR-5	903	94	29,313	2,8555	44,609	3,53	19,30
OPZCR-8	903	6	298,52	1,8911	44,606	2	29,82

Tabla 5.5: Resultados calculados y experimentales de ensayos de efecto separado (SET) para vainas recubiertas

5.4.2. CODEX: Experimento termohidráulico sin irradiación

Para simular la termohidráulica de un accidente LOCA, el Centro para la Investigación en Energía (EK, por sus siglas en húngaro) de Hungría propuso llevar a cabo un experimento con un manojo de siete barras recubiertas en el dispositivo CODEX [17]. El manojo tenía 3 barras de *ZIRLOTM* y 4 barras del mismo material recubiertas con *Cr*. Las barras eran de 550 mm de largo, 9,1 mm de diámetro externo y tenían una resistencia de *W* en el interior separada con una pastilla anular de *ZrO₂*. El dispositivo contaba con varias termocuplas ubicadas en distintas barras a distintas alturas y un medidor de generación de hidrógeno en la salida del circuito. Así se sometía la barra a una historia de potencia calórica generada por la resistencia que simula el calentamiento de las pastillas combustible y se estudiaba el comportamiento de las vainas y la liberación de hidrógeno de las mismas.

Para modelar este experimento, se simularon una barra recubierta y una sin recubrir representativas por separado. Luego, para calcular la generación de hidrógeno se sumó la cantidad producida en cada simulación multiplicando cada resultado por el número de barras de cada tipo de vaina.

En la Figura 5.15 se puede observar la comparación entre las temperaturas experimentales y simuladas a distintas alturas para ambas barras. A grandes rasgos, se puede afirmar que los cálculos predicen la temperatura en diferentes etapas, excepto en la última parte donde la temperatura está cercana a la formación del eutéctico de *Zr* y *Cr*. En este momento se produce un aumento repentino de temperatura en ambos tipos de barras.

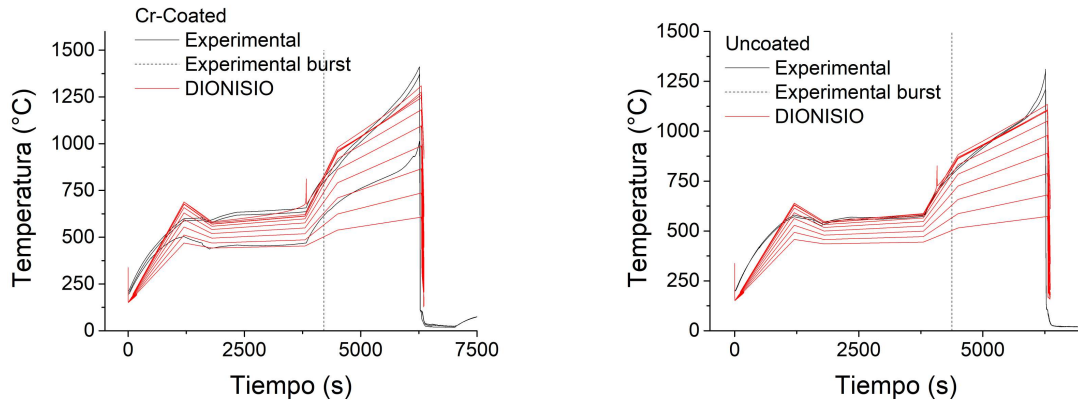


Figura 5.15: Temperatura exterior de la vaina para las barras del experimento CODEx-ATF

Por otro lado, como muestra la Figura 5.16, la tasa de generación de hidrógeno fue subestimada por los cálculos excepto en el tiempo entre 4000 y 5000 segundos que está ligeramente sobrestimada. Como consecuencia, el hidrógeno total calculado está por encima de los valores experimentales hasta los 5700 segundos. La generación final de hidrógeno es la tercera parte de la liberación experimental al final del experimento.

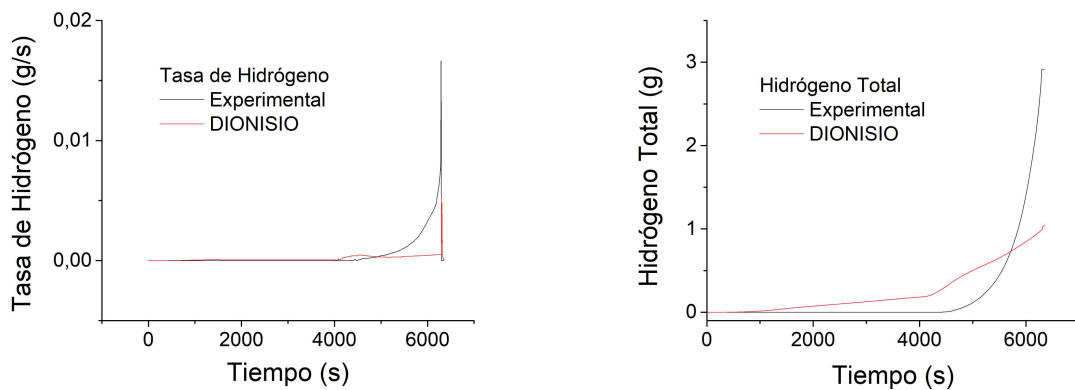


Figura 5.16: Liberación de Hidrógeno en el experimento CODEx-ATF

Referencias

- [1] I. Goldberg, G. L. Spahr, L. S. White, L. A. Waldman, J. F. Giovengo, P. L. Pfennigwerth y J. Sherman. *Fission gas release from ThO₂ and ThO₂-UO₂ fuels (LWBR development program)*. Inf. téc. WAPD-TM-1350. Bettis Atomic Power Lab., 1978.
- [2] I. Goldberg, L. A. Waldman, J. F. Giovengo y W. R. Campbell. “Fission gas release and grain growth in ThO₂-UO₂ fuel irradiated at high emperature” (1979). Number: DOE/ET/34007-1.
- [3] J. Somers, D. Papaioannou, J. McGinley y D. Sommer. “Safety assessment of plutonium mixed oxide fuel irradiated up to 37.7GWdaytonne⁻¹”. *Journal of Nuclear Materials* 437.1 (2013), págs. 303-309. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.02.046.
- [4] J. I. Tijero Cavia. “Simulation of thorium material properties under fission reactor conditions”. Dissertation. München: Technische Universitat München, 2017.

- [5] B. Boer, S. Lemehov, M. Wéber, Y. Parthoens, M. Gysemans, J. McGinley, J. Somers y M. Verwerft. “Irradiation performance of (Th,Pu)O₂ fuel under Pressurized Water Reactor conditions”. *Journal of Nuclear Materials* 471 (2016), págs. 97-109. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2016.01.009.
- [6] 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. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2014.09.077.
- [7] O. Brémond. *IFA-716.1 Fission gas release mechanisms*. Inf. téc. HWR-1008. Noruega: OECD, 2011, pág. 36.
- [8] K. Fuglesang. *In-pile results from the fission gas release mechanisms study in IFA-716 after final unloading HWR-1161*. Inf. téc. HWR-1161. Noruega: PECD, 2016, pág. 44.
- [9] H. K. Jenssen. *Post irradiation examination (PIE) on the six test rods from the FGR test IFA-716*. Inf. téc. HWR-1155. Noruega: OECD, 2017, pág. 72.
- [10] R. Jošek. *The high initial rating test IFA-677.1: Final report on in-pile results*. Inf. téc. HWR-872. Noruega: OECD, 2008, pág. 72.
- [11] Spreadsheet. *Aa1-Aa2 SCIP-II-Data for IAEA CRP ATF-TS*.
- [12] G. Pastore, K. A. Gamble y J. D. Hales. *Modeling Benchmark for FeCrAl Cladding in the IAEA CRP ACTOF: FeCrAl-C35M Material Models and Benchmark Cases Specifications*. Inf. téc. INL/EXT-17-43695-Rev000. Idaho National Lab. (INL), 2017.
- [13] E. Perez-Feró et al. “Experimental database of E110 claddings exposed to accident conditions”. *Journal of Nuclear Materials* 397 (1-3 2010), págs. 48-54. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2009.12.005.
- [14] F. J. Erbacher. *REBEKA test results*. Inf. téc. KfK, 1981.
- [15] I. A. E. Agency. *Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance (ACTOF)*. Publisher: IAEA. Vienna, 2020. URL: <https://www.iaea.org/publications/14691/analysis-of-options-and-experimental-examination-of-fuels-for-water-cooled-reactors-with-increased-accident-tolerance-actof>.
- [16] M. Seveck. *Modeling Benchmark for Chromium-coated Opt. ZIRLOTM Cladding in the IAEA CRP ATF-TS. Chromium-coated Opt. ZIRLOTM Cladding Material Models and Benchmark Cases Specifications*. Inf. téc. Czech Technical University, 2022.
- [17] C. for Energy Research(EK). *Proposal for the CODEX-ATF test in the framework of the IAEA ATF-TS project*. Inf. téc. EK, 2022.

6. Estudios de Sensibilidad e Incerteza

Como se mencionó en la introducción, los proyectos anteriores al ATF-TS fueron los proyectos FUMAC y ACTOF. Particularmente en el proyecto FUMAC se estudiaron los experimentos IFA 650-9, 650-10 y 650-11 que fueron retomados en el proyecto ATF-TS para realizar estudios de sensibilidad de los códigos de desempeño de combustibles modificando los materiales originales y tradicionales (UO_2 y Zry) por los distintos conceptos de ATF. Nosotros trabajamos particularmente con una pastilla de UO_2 y una vaina de FeCrAl.

6.1. Experimentos de barras completas: Los casos IFA-650-x

Los ensayos integrales en condiciones de accidente LOCA IFA 650-9 [1], 650-10 [2] y 650-11 [3], se llevaron a cabo en secciones de barras combustibles previamente irradiadas en diferentes reactores comerciales. En el caso del experimento IFA 650-9, se utilizó una sección de barra procedente de un combustible con un quemado promedio de 89,9 MWd/kgU, mientras que en el IFA 650-10, las barras irradiadas alcanzaron un quemado de 61 MWd/kgU. Ambos ensayos emplearon barras tipo PWR. En el caso del IFA 650-11, los segmentos de barras correspondían a un combustible WWER-440 irradiado hasta alcanzar un quemado de 56,0 MWd/kgU. Los tres experimentos comenzaron estabilizando la temperatura del combustible mediante la circulación forzada del refrigerante, que posteriormente se mantuvo por convección natural.

DIONISIO cuenta con un módulo termohidráulico para simular los distintos fenómenos en las barras de combustible, a partir de las condiciones experimentales de los ensayos como el historial de potencia previa a la irradiación, las características geométricas de las barras, como radios de pastillas y vainas, longitud de la barra, entre otros, y las condiciones hidráulicas como flujo de refrigerante, presión y temperatura. Las predicciones obtenidas se compararon con los resultados experimentales reportados, en particular los relacionados con la temperatura de la barra, presión interna y deformaciones.

DIONISIO también fue empleado para simular los experimentos IFA 650-10 y 650-11 usando como entrada las condiciones de contorno proporcionadas por SOCRAT en sustitución del modelo termohidráulico de DIONISIO. En la Tabla 6.1 se resumen los tiempos transcurridos desde el inicio del accidente hasta los fenómenos de *ballooning* y *burst*, medidos y predichos por DIONISIO con el módulo termohidráulico, así como los valores obtenidos con SOCRAT y DIONISIO a partir de condiciones de contorno proporcionadas por SOCRAT. Además usó solamente el módulo termohidráulico para predecir el comportamiento del FeCrAl con DIONISIO. Cabe destacar que no existe un experimento con FeCrAl de los IFA 650-xx para contrastar con los resultados obtenidos.

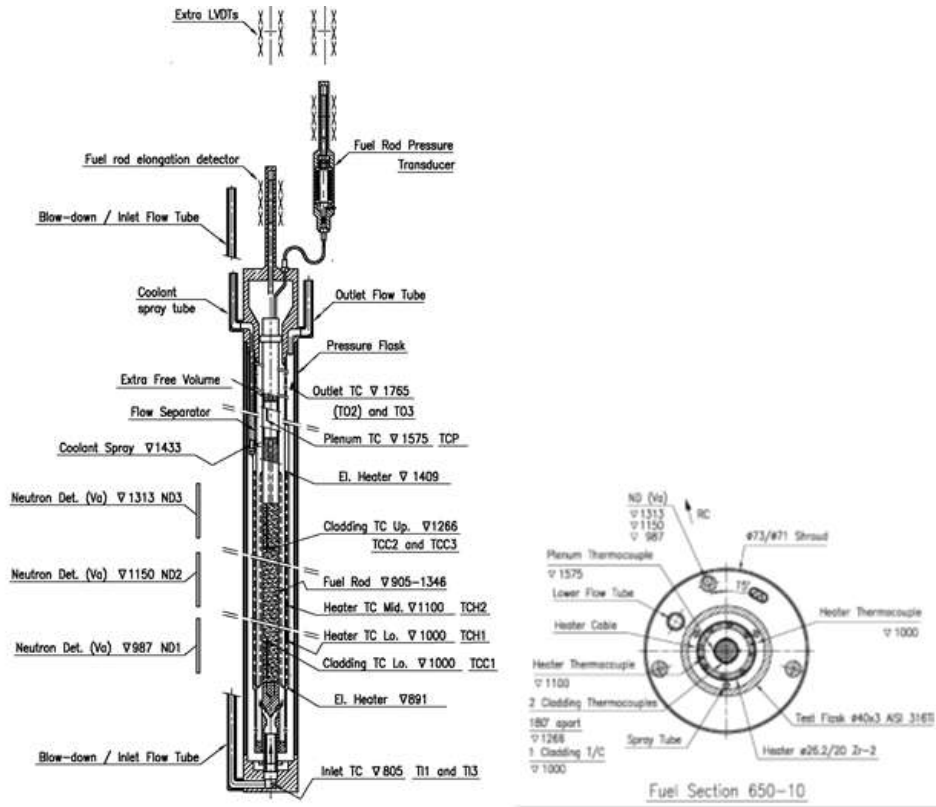


Figura 6.1: Detalle del dispositivo de alta presión de Halden para experimentos del tipo LOCA[4]

	IFA 650-9		IFA 650-10		IFA 650-11	
	ballooning	burst	ballooning	burst	ballooning	burst
	[s]	[s]	[s]	[s]	[s]	[s]
DIONISIO Zry	79,89	121,2	163,7	240,5	151,4	175,7
DIONISIO (CC SOCRAT)	—	—	109,7	233,8	118,2	170,8
DIONISIO FeCrAl	—	—	167	231,3	131	200,3
Experimental	105	130	199	250	180	210
SOCRAT		133		252		206,5

Tabla 6.1: Comparación entre los datos experimentales del instante de *ballooning* y *burst* y las predicciones de SOCRAT, de DIONISIO con su modelo termohidráulico y de DIONISIO con las condiciones de contorno de SOCRAT

Se observa que los tiempos de *ballooning* y *burst* obtenidos con DIONISIO para Zry considerando las condiciones del refrigerante en el canal con el módulo de accidente concuerdan significativamente con los valores experimentales. En ciertos casos, como el tiempo del *burst* en el IFA 650-10, los resultados obtenidos con el módulo termohidráulico son más cercanos a los valores experimentales que los calculados con las condiciones de contorno proporcionadas por SOCRAT[4, 5]. Por otro lado, los valores de *ballooning* y *burst* de las ejecuciones con FeCrAl permanecen muy cercanos a los valores de las ejecuciones con Zry para los experimentos 650-10 y 650-11.

6.1.1. IFA-650-9

El experimento IFA 650-9 utilizó combustible suministrado por Framatome ANP, el cual fue irradiado previamente en la planta nuclear de Gösgen en Suiza, alcanzando un quemado de 89,9 MWd/kgU. Durante el desarrollo de la prueba, la potencia de la barra de combustible se mantuvo constante en 25 kW/m, con el objetivo de alcanzar una temperatura máxima de la vaina de 1100 °C. En la Tabla 6.2 se presentan los principales parámetros del experimento y los valores empleados como entradas en el código DIONISIO.

Parámetros	Valor
Pastilla	
Enriquecimiento inicial $[wt\%^{235}U]$	3,5
Densidad UO_2 $[g/cm^3]$	10,45
Diámetro $[mm]$	9,131
Volumen del <i>dishing</i> $[mm^3]$	16
Quemado $[MWd/kgU]$	89,9
Vaina	
Material	DX Zr-2.5Nb (duplex)
Diámetro exterior $[mm]$	10,75
Espesor $[mm]$	0,725
Espesor medio de óxido $[\mu m]$	7
Contenido medio de hidrógeno $[ppm]$	30
Volumen Libre	
Gas de llenado/presión $[bar]$	95 % Ar + 5 % He/ 40
Volumen $[cm^3]$	19

Tabla 6.2: Principales parámetros del experimento IFA 650-9 usados como datos de entrada en DIONISIO.

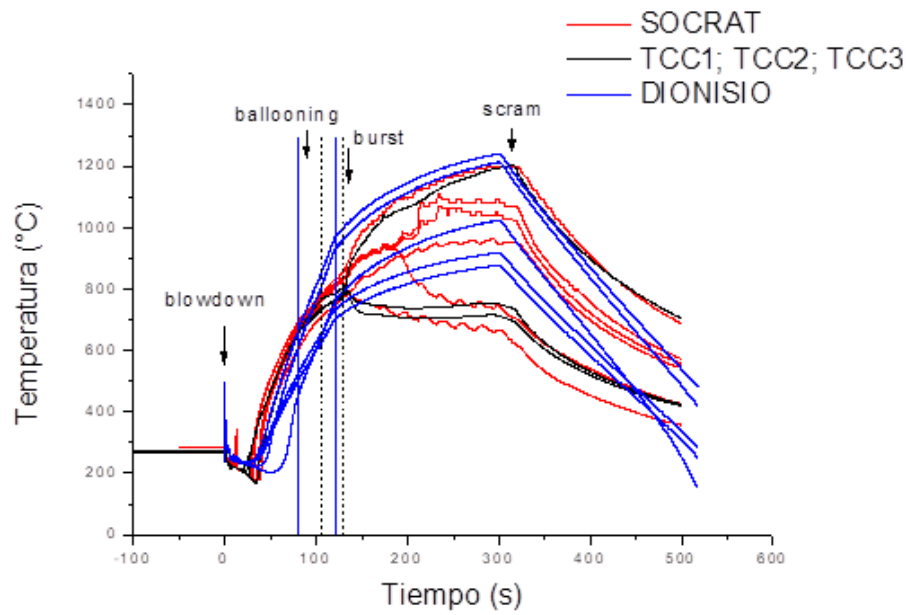


Figura 6.2: Comparación de los valores medidos de la temperatura exterior de la vaina, en tres posiciones axiales durante el experimento IFA650-9 con los valores calculados con DIONISIO y SOCRAT. Predicción y medición de los instantes de ocurrencia del *ballooning* y *burst* indicando el *scram*.

La Figura 6.2 muestra la comparación entre los valores calculados con DIONISIO y los datos experimentales obtenidos durante el IFA 650-9. Estas comparaciones se realizaron en tres posiciones axiales de la barra de combustible, correspondientes a TCC1, TCC2 y TCC3 (ubicadas en la sección inferior, media y superior, respectivamente). En esta Figura también se señalan los tiempos asociados al inicio del vaciado del dispositivo, el *ballooning*, el *burst* y el *scram*.

Durante la simulación con DIONISIO, la vaina se dividió en cinco sectores axiales, coincidiendo con las ubicaciones de las termocuplas del experimento (inferior, media y superior). Los resultados obtenidos se compararon con las predicciones generadas por el código termohidráulico SOCRAT para evaluar la evolución de la temperatura.

Debido a la relocación del combustible, la temperatura medida con la termocupla en la posición inferior alcanzó aproximadamente los 1200 °C, y la prueba se detuvo para evitar que las temperaturas siguieran aumentando. La falla de la barra ocurrió a una temperatura aproximada de 800 °C, lo cual sucedió 130 segundos después del inicio del accidente. Una particularidad de este experimento fue la marcada fragmentación, relocación y dispersión del combustible. Los resultados muestran que la evolución de la temperatura en la etapa inicial del experimento, así como los momentos en que ocurrieron el *ballooning* y el *burst*, están en muy buen acuerdo con las predicciones de ambos códigos.

Después del fenómeno de *burst*, las predicciones de ambos códigos muestran un comportamiento similar, aunque presentan discrepancias en comparación con los valores registrados por dos de las termocuplas. Estas diferencias se atribuyen, según un análisis

postaccidente, al fenómeno de relocación del combustible: tras el *ballooning* de la vaina, el material fragmentado de las pastillas situadas originalmente en la parte superior de la barra se desplazó hacia el volumen libre creado en la región del *ballooning*, un fenómeno que no está modelado en nuestra simulación de accidente.

En la Figura 6.3, se presentan los resultados de la presión interna de la barra de combustible simulados y medidos experimentalmente. La notable caída en la presión interna señala la liberación de gases desde la vaina como consecuencia de la ruptura provocada por el *burst*.

Además, la Figura 6.3 incluye los valores simulados y medidos de la elongación de la vaina. Antes del *burst*, la concordancia entre las simulaciones y las mediciones es adecuada. Sin embargo, tras la deformación de la vaina, los valores experimentales muestran una contracción que podría estar relacionada con la relocación del material entre los diferentes sectores, un fenómeno aún no contemplado en nuestras simulaciones. Los cálculos predicen una tasa de elongación más lenta tras el *ballooning* hasta el momento de la ruptura.

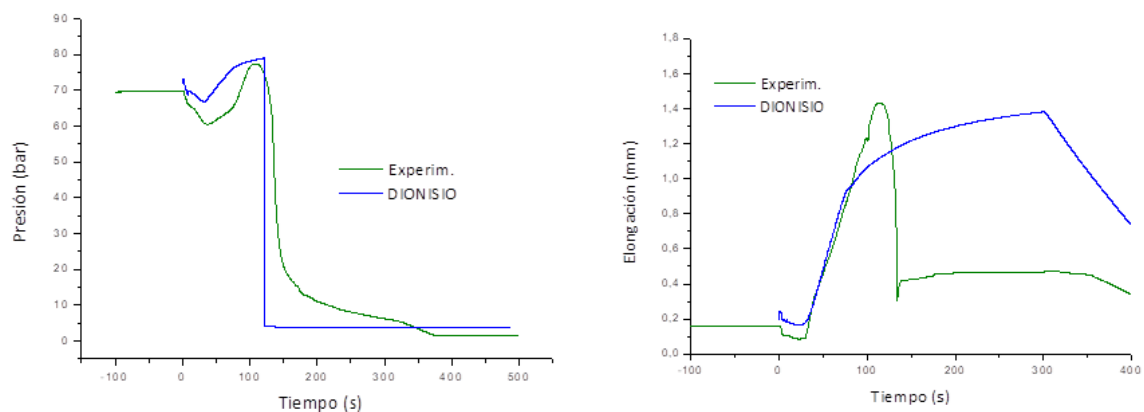


Figura 6.3: Comparación de los valores calculados y medidos de la presión interna de la barra durante el experimento IFA 650-9 (izq.) y Comparación entre los valores calculados y medidos de la elongación axial de la vaina durante el IFA 650-9. (der.)

6.1.2. IFA-650-10

Las condiciones del experimento IFA 650-10 fueron similares a las del IFA 650-9. En esta ocasión, el combustible consistió en un segmento de barra tipo PWR previamente irradiado, con un quemado promedio de 61 MWd/kgU. La temperatura máxima registrada en la vaina alcanzó los 850 °C, y el fenómeno de *burst* se produjo 249 segundos después del inicio de la pérdida de refrigerante. Este experimento mostró una menor relocación de combustible en comparación con lo observado en el IFA 650-9. En la Tabla 6.3 se presentan los principales parámetros del combustible utilizados como datos de entrada en DIONISIO para la simulación. Para simular las vainas de FeCrAl simplemente se modificó el material y se dejaron los demás parámetros constantes.

Parámetros	Valor
Pastilla	
Enriquecimiento inicial [wt % ²³⁵ U]	4,49
Densidad UO_2 [%DT]	95,32
Diámetro [mm]	8,21
Volumen del <i>dishing</i> (ambos lados) [mm ³]	n/a (dished)
Quemado medio [MWd/kgU]	61
Vaina	
Material	Zry-4
Diámetro exterior [mm]	9,50
Espesor [mm]	0,57
Espesor medio de óxido [μ m]	20 - 30
Contenido medio de hidrógeno [ppm]	150 - 220
Volumen Libre	
Gas de llenado/presión [bar]	95 % Ar + 5 % He/ 40
Volumen [cm ³]	17

Tabla 6.3: Principales parámetros del combustible en el experimento IFA 650-10 y valores de entrada de DIONISIO

La Figura 6.4 presenta las temperaturas de la vaina medidas experimentalmente en tres posiciones axiales (TCC1, TCC2 y TCC3, correspondientes a las secciones inferior, media y superior) durante el IFA 650-10. Estas mediciones se comparan, desde el inicio del accidente, con las predicciones obtenidas usando los códigos DIONISIO y SOCRAT. También se indican los momentos en los que ocurrieron la pérdida de refrigerante, el *ballooning*, el *burst* y el *scram*. En las simulaciones de DIONISIO para Zry y FeCrAl, la barra de combustible fue dividida en 10 sectores axiales, siendo los sectores 3 a 9 los que abarcan las posiciones de las termocuplas 1 a 3. Las predicciones realizadas con el módulo termohidráulico muestran un buen acuerdo con las tendencias de temperatura observadas experimentalmente y con los resultados del código SOCRAT. Cabe destacar que la predicción del instante del *burst* realizada con DIONISIO para Zry se adelanta en 10 seg respecto del valor medido experimentalmente. La predicción de DIONISIO para FeCrAl está también en el orden de los demás cálculos.

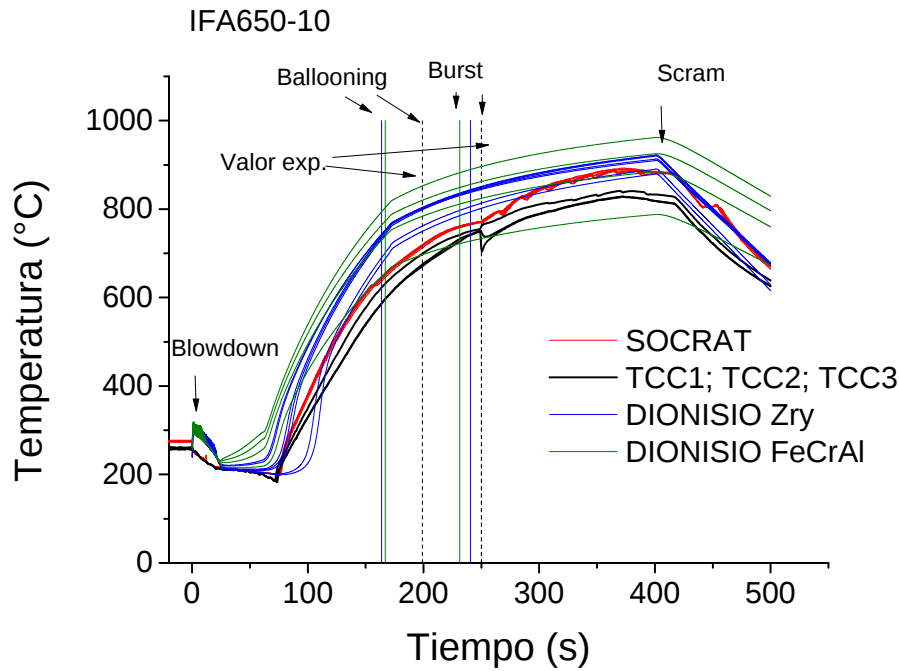


Figura 6.4: Comparación de los valores medidos de la temperatura exterior de la vaina, en tres posiciones axiales durante el experimento IFA650-10 con los valores calculados con DIONISIO y SOCRAT. Predicción y medición de los instantes de ocurrencia del *ballooning* y *burst* indicando el *scram*.

Para mostrar el desempeño del módulo termohidráulico, se reprodujo el experimento IFA 650-10 ejecutando DIONISIO bajo dos configuraciones distintas: en la primera, se utilizó la subrutina termohidráulica recientemente incorporada para modelar las condiciones del accidente; en la segunda, se omitió dicha subrutina y se emplearon como condiciones de contorno (CC) los valores calculados por SOCRAT dentro del canal. En la Figura 6.5 se comparan las mediciones de presión interna de la barra con los resultados obtenidos en ambas configuraciones. En general, la concordancia es adecuada, aunque la predicción de la presión antes del *burst* resulta ligeramente más precisa cuando se utiliza el módulo termohidráulico. Por su lado, las ejecuciones con FeCrAl se adelantan unos segundos a las ejecuciones con Zry.

Asimismo, la Figura 6.5 muestra la comparación entre la elongación axial de la vaina medida experimentalmente y las curvas calculadas para los tres casos de simulación. Nuevamente, se observa un mejor acuerdo cuando DIONISIO se ejecuta con la subrutina termohidráulica activada. También se observa que la elongación del FeCrAl es bastante menor que para el Zry debido a que posee menor fluencia a alta temperatura.

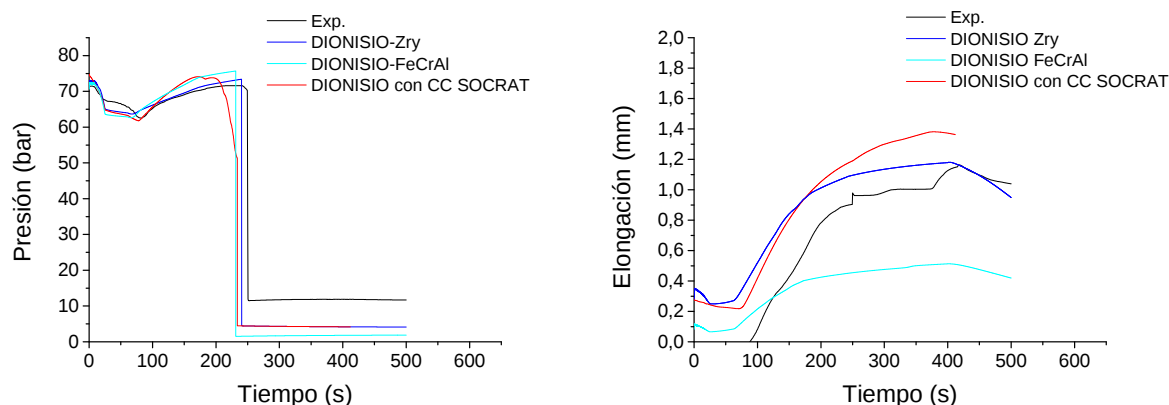


Figura 6.5: Comparación de los valores calculados y medidos de la presión interna de la barra durante el experimento IFA 650-10 (izq.) y Comparación entre los valores calculados y medidos de la elongación axial de la vaina (der.)

6.1.3. IFA-650-11

El experimento IFA 650-11 replicó condiciones similares a las de los ensayos IFA-9/10, empleando segmentos de barras de combustible VVER-440 que habían sido irradiados hasta alcanzar un quemado promedio de 56,0 MWd/kgU. Durante este ensayo LOCA, se mantuvo una potencia lineal constante de 24 W/cm, logrando una temperatura máxima en la vaina de 1000 °C. El fenómeno de *burst* se registró a los 207 segundos de iniciado el evento. La Tabla 6.4 presenta los principales parámetros de la barra de combustible utilizados en el experimento y considerados como entradas para el código DIONISIO. Nuevamente para los cálculos con FeCrAl se modificó solamente el tipo de material de la vaina.

La Figura 6.6 muestra una comparación entre las predicciones realizadas por DIONISIO con ambos materiales, las simulaciones con condiciones de contorno de SOCRAT y las mediciones experimentales de la temperatura de la vaina durante el experimento IFA 650-11. Estas temperaturas se obtuvieron en tres posiciones axiales de la barra de combustible: TCC1 (sector inferior), TCC2 (sector medio) y TCC3 (sector superior).

Las simulaciones realizadas con el código DIONISIO consideraron la división axial de la barra en 10 sectores. Los resultados muestran que las predicciones obtenidas con DIONISIO para Zry están en muy buena concordancia con los datos experimentales. A su vez, las temperatura de las vainas de FeCrAl rondan los mismos valores que las simulaciones hechas con Zry.

Parámetros	Valor
Pastilla	
Enriquecimiento inicial	$[wt \%^{235}U]$ 3,6
Densidad UO_2	$[g/cm^3]$ 10,64
Diámetro	$[mm]$ 7,55
Orificio central de la pastilla	$[mm]$ 1,484
Volumen del <i>dishing</i>	$[mm^3]$ sin <i>dishing</i>
Quemado medio	$[MWd/kgU]$ 56,0
Vaina	
Material	E110
Diámetro exterior	$[mm]$ 9,13
Espesor	$[mm]$ 0,679
Espesor medio de óxido	$[\mu m]$ 5
Contenido medio de hidrógeno	$[ppm]$ 100
Volumen Libre	
Gas de llenado/presión	$[bar]$ 95 % Ar + 5 % He/ 30
Volumen	$[cm^3]$ 16

Tabla 6.4: Principales parámetros del combustible en el experimento IFA 650-11 y valores de entrada de DIONISIO

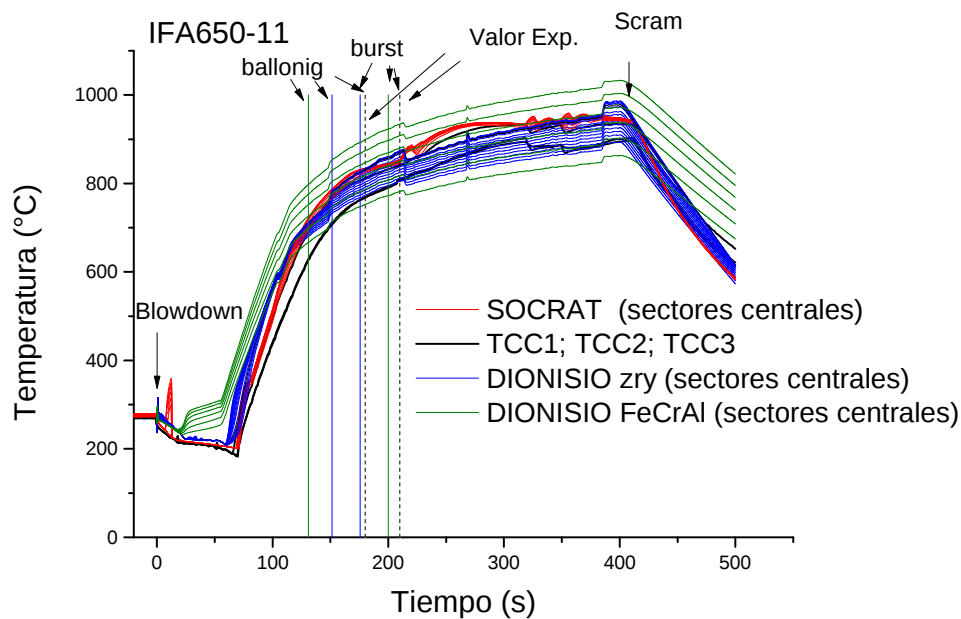


Figura 6.6: Comparación de los valores medidos de la temperatura exterior de la vaina, en tres posiciones axiales durante el experimento IFA650-11 con los valores calculados con DIONISIO y SOCRAT. Predicción y medición de los instantes de ocurrencia del *ballooning* y *burst* indicando el *scram*.

Asimismo, en la Figura 6.7 se presenta la comparación entre las mediciones y las

predicciones de la presión interna y la elongación de la barra de combustible para Zry y las predicciones para una vaina de FeCrAl. En esta gráfica se observan algunas discrepancias respecto al tiempo en el que ocurre el fenómeno de *burst*, reflejadas en la caída de presión. Además, a partir de los 175 segundos, el valor calculado para Zry de la elongación presenta una sobreestimación respecto de los valores experimentales. Nuevamente los valores de elongación calculados para FeCrAl fueron mucho menores que los del Zry.

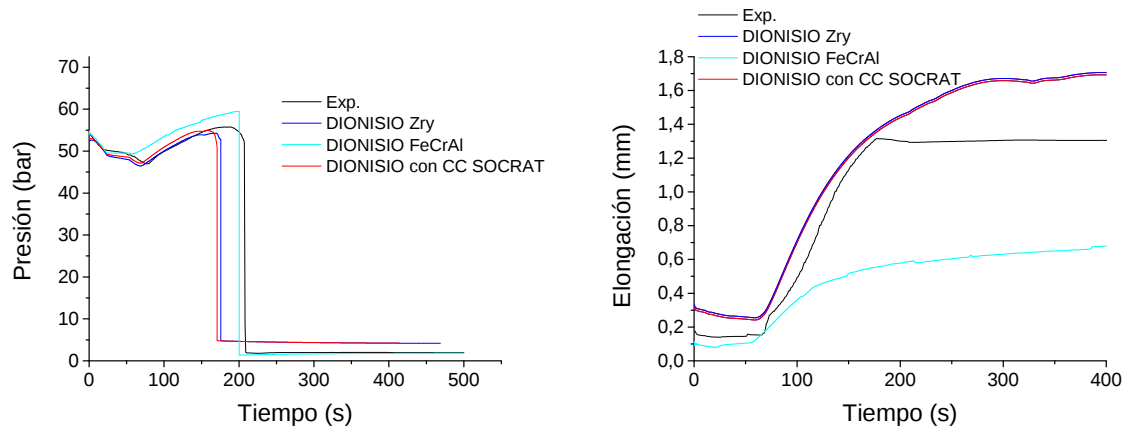


Figura 6.7: Comparación de los valores calculados y medidos de la presión interna de la barra durante el experimento IFA 650-11 (izq.) y Comparación entre los valores calculados y medidos de la elongación axial de la vaina (der.)

6.2. Análisis de incerteza y sensibilidad

Dentro de las actividades propuestas en el proyecto ATF-TS, se acordó realizar un análisis de incerteza y sensibilidad (AIS) sobre el conjunto de experimentos IFA-650, en particular los -9, -10 y -11. El objetivo de este análisis es verificar si las incertezas cuantificadas sobre los parámetros físicos clave pronosticados (temperatura de la vaina, temperatura del gas en el *plenum*, presión del gas en el *plenum*, tiempo de explosión, deformación, elongación, reacción equivalente de la vaina, hidruración, etc.) vinculan bien los datos medidos durante el ensayo, y como actividad opcional para los participantes interesados, identificar los parámetros de entrada importantes a través del análisis de sensibilidad global (ASG).

Considerando la complejidad de IFA-650.9 (quemado muy alto, condiciones termohidráulicas complejas, necesita modelo de relocación axial), se propuso elegir IFA-650.10 (para PWR) o IFA-650.11 (para VVER) con quemado moderado y sin importante relocación axial. En el proyecto se propusieron diversas combinaciones para seleccionar el combustible y el material de la barra. En particular, presentamos en este trabajo los resultados para una vaina de FeCrAl, con combustible UO_2 usual. Para este análisis se propuso el siguiente enfoque:

- Utilizar el método de propagación de la incerteza de entrada, basado en estadísticas de orden no paramétricas;

- Se elige un número de muestra de 200;
- Se acordó una lista común de parámetros de incerteza de entrada, que abarque los datos, propiedades y modelos de fabricación del combustible, así como las condiciones de funcionamiento y prueba;
- Se acordó una lista común de incertezas sobre la producción.
- Se selecciona la herramienta de análisis estadístico AIS (DAKOTA), un software libre que se provee vía SNL [6].

6.2.1. Análisis de incerteza: método de propagación de la incerteza de entrada

De entre todos los enfoques existentes para el análisis de incertezas, el método probabilístico de propagación de incertezas es el más empleado en el ámbito del análisis de seguridad nuclear[7].

Este enfoque considera los códigos de combustible como “cajas negras”, donde las incertezas de los parámetros de entrada se transmiten a las salidas del modelo de simulación mediante la ejecución del código con entradas obtenidas por muestreo de distribuciones previamente conocidas[8].

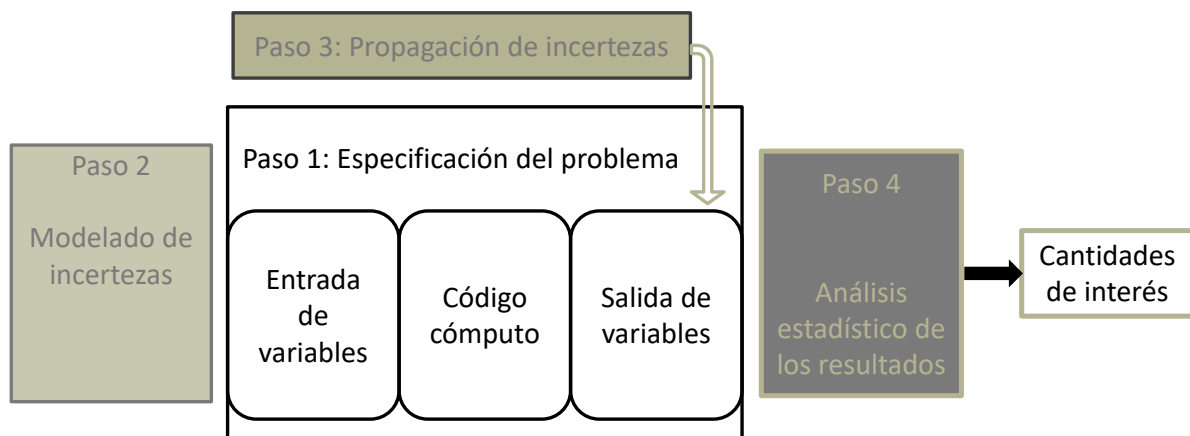


Figura 6.8: Cuatro pasos en las entradas para ejecutar un caso de propagación de incertezas

El proceso se desarrolla en varias etapas (ver Figura 6.8):

- Definición del problema: Se identifican las salidas relevantes del código, así como los parámetros de incerteza correspondientes, que abarcan tanto los modelos de la planta como sus condiciones de operación.
- Modelado de incertezas: Cada parámetro de incerteza se caracteriza mediante una función de densidad de probabilidad (PDF, por sus siglas en inglés), empleando juicios de ingeniería y datos obtenidos de la experiencia en aplicaciones de códigos,

incluyendo ensayos de efectos integrales, separados y simulaciones de plantas completas. Si existen dependencias importantes entre parámetros de incerteza, estas se modelan utilizando coeficientes de correlación.

- c) Propagación de la incerteza a través del código: La propagación se realiza mediante simulaciones Montecarlo[9]. Cada ejecución del código emplea valores diferentes para los parámetros de incerteza, seleccionados aleatoriamente de las distribuciones especificadas en el paso anterior. De esta manera, se genera una muestra simultánea para cada parámetro incierto en cada repetición de la simulación. El resultado final es una muestra del mismo tamaño para cada variable de salida.
- d) Análisis de incerteza estadística de los resultados: Con una cantidad adecuada de simulaciones Montecarlo, es posible calcular estadísticas relevantes, tales como la media, la varianza, límites superior e inferior, y determinar la función de distribución acumulativa (CDF, por sus siglas en inglés). La CDF permite derivar percentiles de la distribución; por ejemplo, si X es una variable aleatoria con CDF F_X , el α -percentil, $\alpha \in [0; 1]$, se define como el valor X_α tal que $F_X(X_\alpha) = P(X \leq X_\alpha) = \alpha$.

Una manera directa de obtener información sobre los percentiles es a través de las estadísticas de orden[10], un método reconocido y ampliamente utilizado en la comunidad nuclear, recomendado para esta actividad[11, 12].

El fundamento de las estadísticas de orden consiste en obtener resultados a partir de los valores ordenados de una muestra. Si se considera una muestra de una variable aleatoria X , denotada por $(X_1, \dots, X_N)$, y su versión ordenada $(X(1), \dots, X(N))$, el α -percentil se estima mediante $X(\alpha_N)$. Además, la CDF de $X(k)$, denotada $F_X(X(k))$, sigue una distribución Beta $\beta(k, N - k + 1)$, la cual es independiente de la distribución original de X . Este resultado permite calcular la probabilidad de que cualquier valor ordenado sea menor que un percentil determinado, según la siguiente expresión:

$$P(X^k \leq X_\alpha) = F_{\beta(k, N-k+1)}(\alpha) \quad (6.1)$$

donde $F_{\beta(k, N-k+1)}$ representa la función de distribución acumulativa de la ley Beta. A partir de esta ecuación, se pueden derivar dos resultados importantes:

- 1) Los límites superior e inferior de los percentiles de interés, dados el tamaño de la muestra N y un nivel de confianza β . Este cálculo implica resolver la ecuación $F_{\beta(k, N-k+1)}(\alpha) = \beta$.
- 2) El tamaño mínimo de la muestra requerido para garantizar un límite inferior o superior de un percentil con el nivel de confianza deseado. Este resultado se conoce como la fórmula de Wilk[13]:

$$N = \frac{\ln(1 - \beta)}{\ln(\alpha)} \quad (6.2)$$

Las estadísticas de orden son ampliamente utilizadas debido a que no requieren información previa sobre la distribución de la variable aleatoria, más allá de asumir que es continua. Además, su sencillez de implementación las hace especialmente atractivas para aplicaciones de licencias en el área de seguridad nuclear.

Gracias a su simplicidad, robustez y claridad, este método será empleado en el presente *benchmark*. Se utiliza un tamaño de muestra de 200 ejecuciones del código. La muestra se genera a partir de las PDF seleccionadas en el paso de modelado de incertezas, suponiendo independencia entre los parámetros de entrada y utilizando muestreo aleatorio simple (SRS, del inglés *Simple Random Sampling*), como se sugiere en los estudios BEMUSE[11, 12].

En este trabajo, el objetivo es estimar los límites superior e inferior correspondientes al 95 % y 5 %, respectivamente, de los α -percentiles con un nivel de confianza de $\beta = 95$ %. Para $N = 200$ y $\alpha = 0,05$ o $\alpha = 0,95$, la Ecuación 6.1 proporciona: $P(X^5 \leq X_{0,05}) > 0,95$ y $P(X^{196} \geq X_{0,95}) > 0,95$, entonces los límites inferior y superior serán en este caso X^5 y X^{196} respectivamente.

Para asegurar el correcto uso de las estadísticas de orden, todas las ejecuciones del código deben completarse con éxito.

6.2.2. Análisis de sensibilidad: método de análisis de sensibilidad global

Además de realizar un análisis de incertidumbre, se llevó a cabo un estudio complementario de sensibilidad para identificar los parámetros de entrada más influyentes desde un punto de vista cualitativo.

Este análisis se puede realizar empleando las 200 ejecuciones de código obtenidas previamente. Por lo general, este procedimiento se combina con el análisis de incertidumbre estadística, utilizando herramientas compartidas para ambos fines.

Más específicamente, si Y representa la salida de interés y $\{X_i\}$ con $i = 1, \dots, p$ denota el conjunto de p parámetros de entrada inciertos (también denominados regresores), será necesario calcular los coeficientes de correlación clásicos, como se detalla a continuación:

Coefficientes de correlación simple (SCC) lineales (o de Pearson): para cada i ,

$$\rho_i = \frac{Cov(Y, X_i)}{\sigma_{X_i} \sigma_Y} \quad (6.3)$$

donde σ_X and σ_Y son las desviaciones estándar empíricas de X e Y . Estos coeficientes miden la dependencia lineal entre la salida y cada uno de los parámetros de entrada o regresores de forma individual.

Una alternativa más precisa para evaluar la relación lineal entre los parámetro de salida y uno de los parámetros de entrada es el **coeficiente de correlación parcial (PCC)**. Este coeficiente considera las correlaciones una vez corregidas por la influencia lineal de los demás parámetros, resultando generalmente en valores mayores que los SCC de Pearson.

Coefficiente de correlación de rangos de Spearman (RCC): Este es análogo al SCC, pero en lugar de utilizar los valores originales de entrada y salida, se emplean sus rangos respectivos. Esta metodología amplía el modelo subyacente a relaciones no lineales pero monótonas, permitiendo obtener mejores resultados en casos de relaciones no lineales citada¹⁰.

Asimismo, el **coeficiente de correlación de rango parcial (PRCC)** mejora la evaluación de relaciones monótonas al eliminar las tendencias asociadas con otros parámetros. Este coeficiente también suele superar al RCC de Spearman en términos de precisión.

Con base en esta información (SCC, PCC, RCC o PRCC), se pueden identificar los parámetros de entrada más relevantes. No obstante, es importante señalar que estos coeficientes sólo capturan dependencias lineales (SCC) o monótonas (RCC), sin considerar interacciones entre parámetros de entrada.[14].

Debido a que los modelos utilizados para analizar los códigos de barras de combustible son complejos y presentan interacciones significativas entre parámetros, estos coeficientes deben ser interpretados como índices cualitativos y relativos para descartar parámetros de entrada no esenciales.

6.2.3. El código Dakota

El código DAKOTA (del inglés *Design Analysis Kit for Optimization and Terascale Applications*) fue desarrollado por *Sandia National Laboratory*[15]. Este software puede descargarse gratuitamente desde su página oficial. Como se observa en la Figura 6.9, DAKOTA proporciona una interfaz flexible y extensible entre códigos de simulación y métodos iterativos de análisis, a través de archivos de entrada y ejecutables propios.

Entre sus capacidades, DAKOTA incluye algoritmos para la cuantificación de la incertidumbre (UQ) mediante métodos de muestreo, como Montecarlo o hipercubo latino, así como herramientas para abordar incertidumbre epistémica (probabilidad de segundo orden o teoría de la evidencia de Dempster-Shafer) y análisis de sensibilidad. Estas funcionalidades pueden emplearse de forma independiente o combinadas en estrategias avanzadas.

En las aplicaciones de esta actividad, los rangos y distribuciones de los parámetros inciertos, el método de análisis de incertidumbre y la cantidad de muestras son definidos en el archivo de entrada de DAKOTA.

Con base en los parámetros definidos en dicho archivo, es posible desarrollar *scripts* específicos para generar los archivos de entrada requeridos por el código de simulación, ejecutar los cálculos correspondientes y recopilar los datos de salida en el archivo de resultados de DAKOTA.

Finalmente, el ejecutable DAKOTA llevará a cabo los análisis solicitados de sensibilidad e incertidumbre estadística, generando los resultados en los archivos de salida especificados.

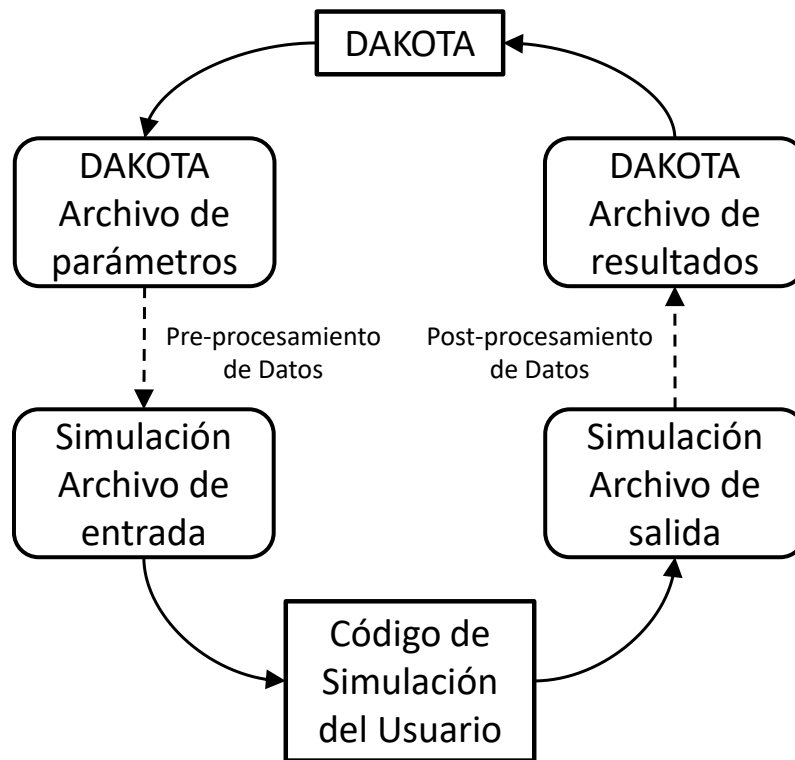


Figura 6.9: Proceso de análisis de incertezas en DAKOTA

6.2.4. Parámetros de entrada

Dentro de los parámetros de entrada para la incerteza y la sensibilidad, se consideraron distintos grupos de datos. Por un lado, incertezas en los datos de diseño y fabricación de barras de combustible dentro de los que se encontraron:

- Diámetro exterior/interior del vaina
- diámetro exterior de la pastilla de combustible
- Enriquecimiento de ^{235}U
- densidad teórica del combustible
- presión del gas de llenado.

También se consideraron incertezas en el desempeño de las barras combustible y las condiciones de borde del experimento

- Modelo de corrosión de la vaina
- Modelo de captación de hidrógeno con vaina
- Potencia media de la barra de ensayo
- Perfil de potencia de la barra de ensayo

- Modelo de calor de decaimiento
- temperatura del refrigerante
- Coeficiente de transferencia de calor de la vaina al refrigerante
- Temperaturas de la vaina

Finalmente, se consideraron incertezas en propiedades físicas y modelos clave:

- conductividad térmica del combustible
- conductividad térmica de la vaina
- coeficiente de expansión térmica del combustible
- coeficiente de expansión térmica de la vaina
- modelo de densificación de combustible
- modelo de hinchamiento de combustible
- tensión de fluencia de la vaina
- módulo elástico de la vaina
- modelo de oxidación de la vaina a alta temperatura
- conductividad térmica de la capa de óxido
- criterios de *burst* de vaina

6.2.5. Resultados en DIONISIO

Antes de proceder al análisis de incertezas con DIONISIO, tuvo que reprogramarse cierta cantidad de subrutinas del código. Estas secciones se compilan solamente cuando la variable de entorno -D DAKOTA se encuentra activada. De esta manera, dado que las N (establecidas en 200) ejecuciones son de carácter automático, todas las interacciones del código con el usuario debieron cancelarse. Así mismo nuevos archivos de entrada y salida deben ajustarse. Se ingresa la lista de variables a ser modificadas dentro de los rangos determinados por el usuario y se extraen los parámetros que serán monitoreados en post proceso. Por último, se debieron incluir dentro del código factores de peso que estadísticamente darán valores a cada una de las variables a ser monitoreadas dentro del rango pertinente.

En las siguientes gráficas, se presentan algunas de las salidas de estos análisis, y se discuten las implicancias desde el punto de vista de las incertezas del código. Analizando por ejemplo los datos presentes en Figura 6.10 se observa que los rangos de variación de los datos de entrada en este análisis, generan una gran variación en la precisión de los tiempos en los que se produce el *burst*. Si bien el valor medio se aproxima a un tiempo

Parámetros de incerteza de entrada	Rango y distribución de incertezas				
	Media	Desvío	Tipo	Límite Inferior	Límite Superior
Diámetro exterior de la vaina (<i>mm</i>)	9,50	0,01	Normal	9,48	9,52
Diámetro interior de la vaina (<i>mm</i>)	8,36	0,01	Normal	8,34	8,38
Diámetro exterior de la pastilla (<i>mm</i>)	8,2	0,01	Normal	8,18	8,22
Densidad del combustible (<i>kg/m³</i>)	10457	50	Normal	10357	10557
Enriquecimiento de ^{235}U (%)	4,487	0,05	Normal	4,387	4,587
Presión de gas de llenado (MPa)	4,0	0,05	Normal	3,9	4,1
Potencia relativa durante la irradiación	1,0	0,01	Normal	0,98	1,02
Potencia relativa durante el ensayo	1,0	0,025	Normal	0,95	1,05
Perfil de potencia de la barra de ensayo	1,0	0,01	Normal	0,98	1,02
Temperatura de la vaina ($^{\circ}\text{C}$)	1,0	10	Normal	T-20	T+20
Temperatura del refrigerante ($^{\circ}\text{C}$)	1,0	5	Normal	T-10	T+10
Coefficiente de transferencia térmica vaina-refrigerante	1,0	0,125	Normal	0,75	1,25
Modelo de conductividad térmica del combustible	1,0	5 %	Normal	0,90	1,10
Modelo de conductividad térmica de la vaina	1,0	5 %	Normal	0,90	1,10
Modelo de expansión térmica del combustible	1,0	5 %	Normal	0,90	1,10
Modelo de expansión térmica de la vaina	1,0	5 %	Normal	0,90	1,10
Modelo de densificación del combustible	1,0	5 %	Normal	0,90	1,10
Modelo de hinchamiento del combustible	1,0	5 %	Normal	0,90	1,10
Tensión de fluencia de la vaina	1,0	5 %	Normal	0,90	1,10
Módulo elástico de la vaina	1,0	5 %	Normal	0,90	1,10
Modelo de corrosión de la vaina en estado estacionario de operación	1,0	12,5 %	Normal	0,75	1,25
Fracción de <i>pickup</i> de hidrógeno en la vaina	1,0	15 %	Normal	0,70	1,30
Modelo de oxidación de la vaina a alta temperatura	1,0	15 %	Normal	0,70	1,30
Conductividad térmica de la capa de óxido	1,0	10 %	Normal	0,80	1,20
Criterio de <i>burst</i> de la vaina	1,0	10 %	Normal	0,80	1,20

Tabla 6.5: Rango y distribución de incertezas de parámetros de entrada

aproximadamente en 229 segundos, que no está muy alejado del valor experimental, es notable como el rango de variación (a partir de la variación de los datos de entrada entre el 5 % y el 95 %) va desde los 180 a los 380 segundos. Esto se refleja en la importancia de la influencia estadística de todos los parámetros incluidos en esta variable presente en las Tablas 6.5.

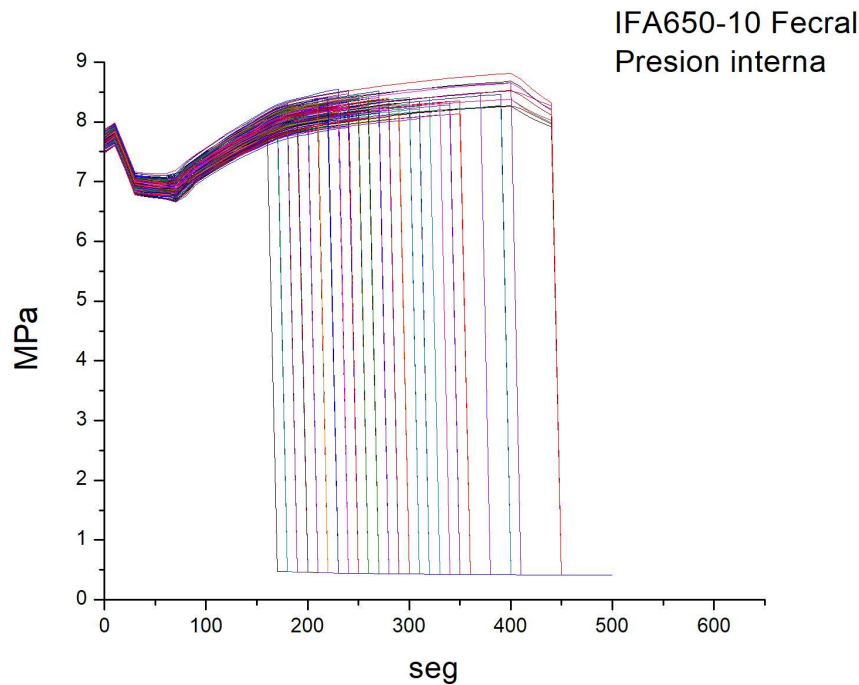


Figura 6.10: Presión interna de la vaina obtenida en las 200 ejecuciones a través del código DAKOTA

A diferencia del tiempo en el que se produce el *burst*, la dispersión en la temperatura de la vaina y de la pastilla no presenta una variación tan extensa como se observa en la Figura 6.11. Especialmente hasta el rango 0-250 segundos. Después de ese valor se produce una mayor dispersión en un rango de aproximadamente 200 grados, un valor que no está muy alejado de los errores usuales en este tipo de experimentos. A partir del *scram*, en 400 segundos, el descenso de todas las curvas es uniforme sin variación de pendientes ni discontinuidades. Las curvas de temperatura presentan variaciones en su pendiente antes del *scram*, debido a que cuando el *burst* se produce, el dominio deja de modificarse, debido a que la presión interna de la barra se iguala a la exterior y no continúa modificándose la geometría del conjunto. Esto se relaciona con las gráficas que se presentan en la Figura 6.12 en donde presentamos el aumento del diámetros exterior de la vaina y la tensión tangencial de la misma. En ambas figuras, se distingue el momento en que se produce la rotura de la vaina, como la tensión decrece notoriamente al relajarse, debido a la mencionada rotura del material.

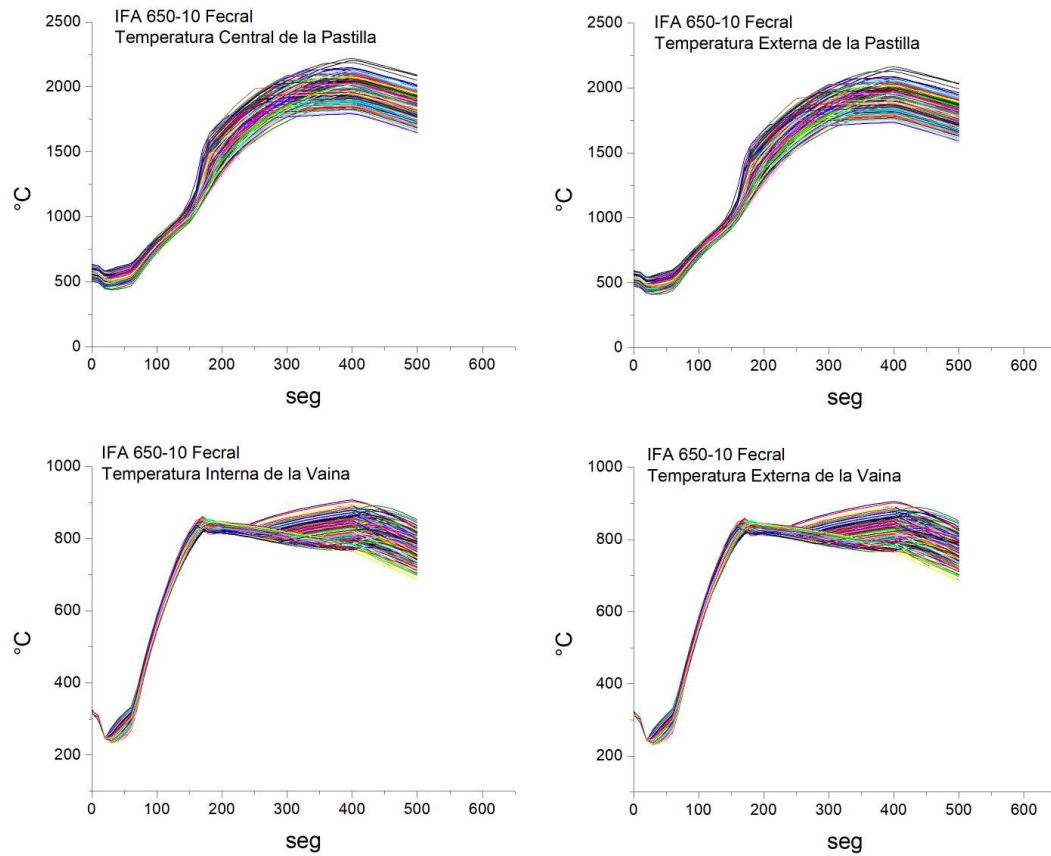


Figura 6.11: Temperatura central y exterior del combustible, temperatura interna y externa de la vaina obtenida en las 200 ejecuciones a través del código DAKOTA

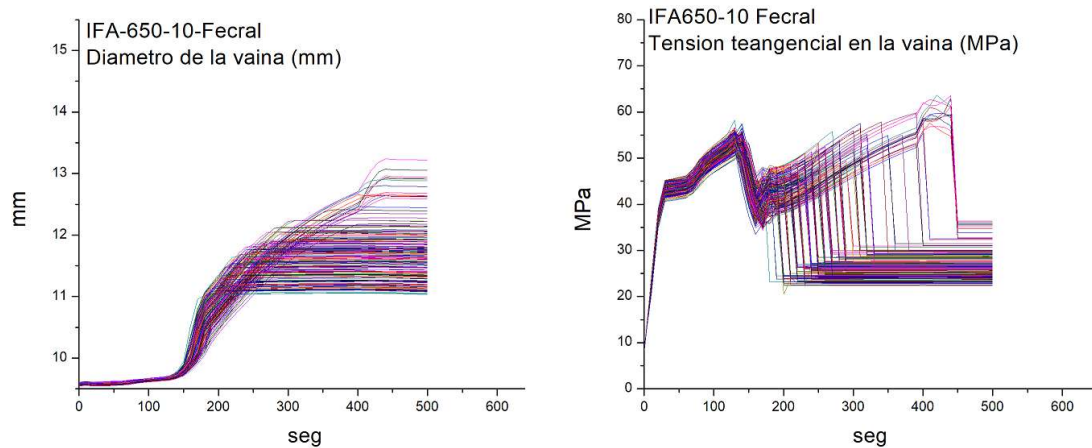


Figura 6.12: Diámetro de la vaina y tensión tangencial obtenidos en las 200 ejecuciones a través del código DAKOTA

En la Figura 6.13 se gráfica el crecimiento axial de la columna de pastillas combustibles y de la vaina, parámetros de gran interés en este tipo de experimentos. Los modelos presentes en DIONISIO responden adecuadamente al crecimiento debido esencialmente a

dilatación térmica, dada el importante aumento de la temperatura del combustible y de la vaina que se observa en Figura 6.11. La dispersión que introducen las variaciones de los modelos involucrados en estas predicciones son adecuadas y no presentan apartamientos considerables.

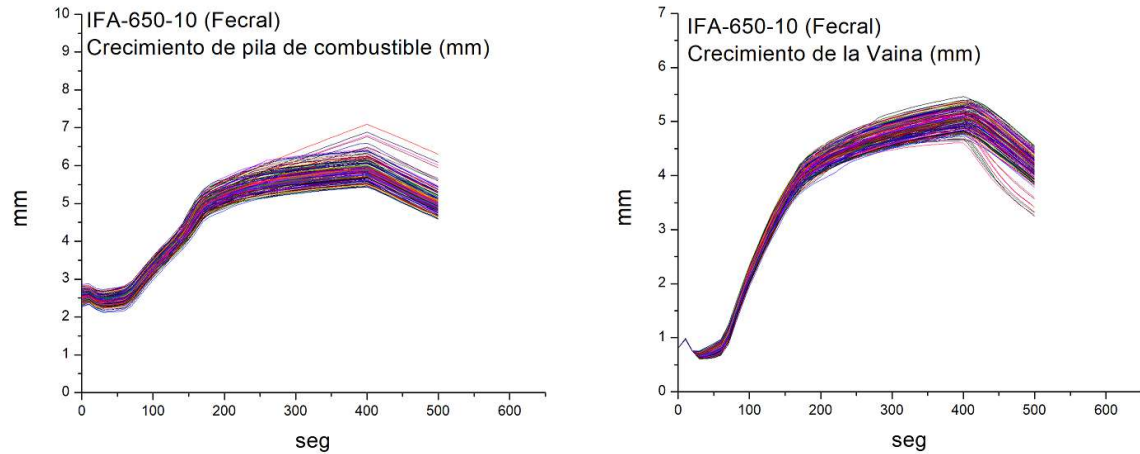


Figura 6.13: Crecimiento de la columna de combustible y de la vaina obtenidos en las 200 ejecuciones a través del código DAKOTA

En la Figura 6.14 finalmente, presentamos otro de los parámetros relevantes de los experimentos como son los relativos al crecimiento de la capa de óxido y el porcentaje de reacción presente en el material de la vaina. El experimento IFA 650-10 parte de una capa de óxido de 25 micrones, desarrollada en el quemado previo de las barras en las irradiaciones de operación normal. En el caso del FeCrAl, y esta es una de las principales ventajas de este material como material clasificado ATF, el óxido no aumenta. Esto se ve reflejado en la escasa modificación en la capa de óxido (a partir de la variación estadística del tamaño inicial). Lo mismo sucede en el caso del porcentaje de reacción, observándose algunos casos de alta reacción, que corresponden a los casos en donde la temperatura de la vaina aumenta mas allá de 1400 grados, que son los casos que caen dentro del rango mayor a 95 % de la estadística.

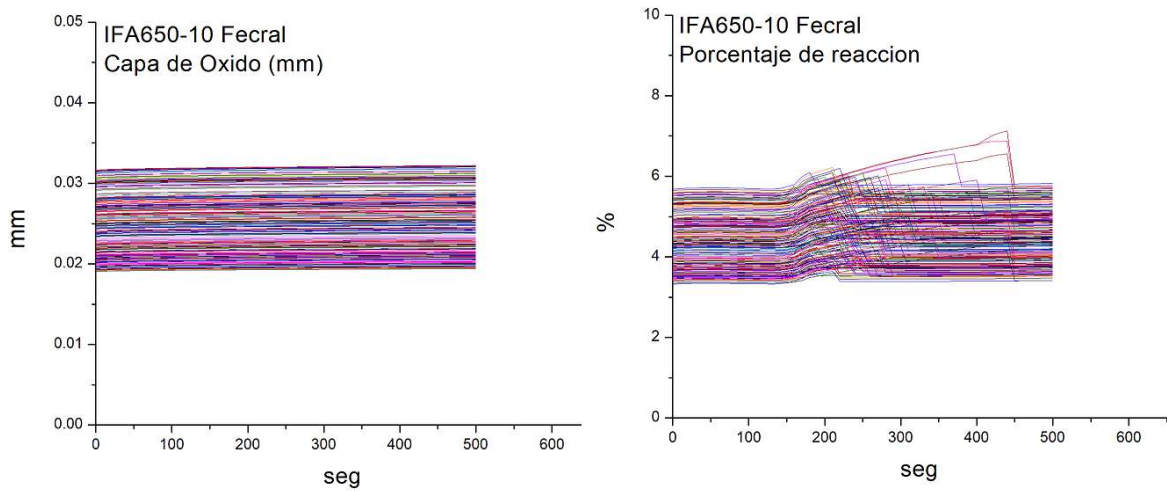


Figura 6.14: Capa de óxido final y porcentaje reaccionado de la vaina obtenidos en las 200 ejecuciones a través del código DAKOTA

Finalmente, en la Tabla 6.6 se pueden observar los resultados obtenidos de la sensibilidad del código respecto de los parámetros de entrada introducidos en la Tabla 6.5. Las letras H, M y L representan si la variable de entrada tiene un efecto alto, medio o bajo en el comportamiento mencionado mecánico o térmico de la vaina o de la pastilla. El comportamiento mecánico está fuertemente influenciado por las dimensiones de la barra (Diámetros interno y externo de la vaina y externo de la pastilla), por la presión inicial del gas de llenado y por la tensión de fluencia de la vaina. El coeficiente de transferencia térmica de la vaina al refrigerante influye los tres comportamientos fuertemente debido a que influye en las condiciones de contorno de la vaina para definir la temperatura de la pared externa. El comportamiento térmico del combustible está fuertemente influido por los diámetros interno de la vaina y el de la pastilla. Esto se debe principalmente a la interacción entre la pastilla y la vaina (PCI, del inglés *pellet-cladding interaction*). Los modelos de conductividad tiene influencia mediana en los comportamientos mecánico de la barra y térmico de la vaina. También se observa que el comportamiento térmico de la vaina es influido medianamente por el diámetro de la pastilla y de manera alta por el modelo de corrosión para condiciones estacionarias.

Parámetros de incerteza de entrada	Rango de Importancia (H,M,L))		
	Comportamiento	Comportamiento	Comportamiento Mecánico
	Térmico del Combustible	Térmico de la Vaina	
Diámetro exterior de la vaina (mm)	L	L	H
Diámetro interior de la vaina (mm)	H	L	H
Diámetro exterior de la pastilla (mm)	H	M	H
Densidad del combustible (kg/m^3)	L	L	L
Enriquecimiento de ^{235}U (%)	L	L	L
Presión de gas de llenado (MPa)	L	L	H
Potencia relativa durante la irradiación	L	L	L
Potencia relativa durante el ensayo	L	L	L
Perfil de potencia de la barra de ensayo	L	L	L
Temperatura de la vaina ($^{\circ}C$)	L	L	L
Temperatura del refrigerante ($^{\circ}C$)	L	L	L
Coeficiente de transferencia térmica vaina-refrigerante	H	H	H
Modelo de conductividad térmica del combustible	L	M	M
Modelo de conductividad térmica de la vaina	L	M	M
Modelo de expansión térmica del combustible	L	L	L
Modelo de expansión térmica de la vaina	L	L	L
Modelo de densificación del combustible	L	L	L
Modelo de hinchamiento del combustible	L	L	L
Tensión de fluencia de la vaina	L	L	H
Módulo elástico de la vaina	L	L	L
Modelo de corrosión de la vaina en estado estacionario de operación	L	H	L
Fracción de <i>pickup</i> de hidrógeno en la vaina	L	L	L
Modelo de oxidación de la vaina a alta temperatura	L	L	L
Conductividad térmica de la capa de óxido	L	L	L
Criterio de <i>burst</i> de la vaina	L	L	L

Tabla 6.6: Influencia de los parámetros de entrada en los comportamientos térmicos de la vaina y el combustible y en el comportamiento mecánico. H, M y L representan una influencia alta, media y baja respectivamente.

Referencias

- [1] O. H. R. Project. *LOCA testing at Halden, the ninth experiment IFA 650-9*. OECD, 2009.
- [2] O. H. R. Project. *LOCA testing at Halden, the tenth experiment 650-10*. OECD, 2010.
- [3] O. H. R. Project. *LOCA testing at Halden, the VVER Fuel experiment IFA-650.11*. OECD, 2010.

- [4] 5. A. Kiselev. *Short Information on the Results of IFA-650.9, IFA-650.10 and IFA-650.11 Calculations with SOCRAT code*. Technical Note, version 3, IBRAE RAN, 2016.
- [5] L. Bolshov y V. Strizhov. "SOCRAT: THE SYSTEM OF CODES FOR REALISTIC ANALYSIS OF SEVERE ACCIDENTS." *American Nuclear Society* (2006). URL: <https://www.osti.gov/biblio/21021192>.
- [6] e. a. B. Adams. *DAKOTA, A Multilevel Parallel Object-Oriented Framework for Design Optimization, Parameter Estimation, Uncertainty Quantification, and Sensitivity Analysis: Version 5.1 User's Manual*. Sandia Technical Report SAND2010-2183, Updated Version 5.3, 2013. URL: <http://www.cs.sandia.gov/dakota>.
- [7] H. Glaeser. "GRS Method for Uncertainty and Sensitivity Evaluation of Code Results and Applications". *Science and Technology of Nuclear Installations* 798901-2008 (2008).
- [8] J. Zhang, J. Segurado y C. Schneidesch. "Towards an Industrial Application of Statistical Uncertainty Analysis Methods to Multi-physical Modelling and Safety Analyses". *Proc. OECD/CSNI Workshop on Best Estimate Methods and Uncertainty Evaluations* (2011).
- [9] S. Wilks. "Determination of sample sizes for setting tolerance limits". *Ann. Math. Stat.* 12 (1941).
- [10] A. Guba, M. Makai y L. Pal. "Statistical aspects of best estimate method-I". *Reliability Engineering and System Safety* 80 (2003).
- [11] B. P. V. Report. "Status report on the area, classification of the methods, conclusions and recommendations". *OECD/NEA/CSNI/R(2011)4* (2011).
- [12] M. McKay. *Sensitivity and uncertainty analysis using a statistical sample of input values*. Ch. 4, Uncertainty Analysis, Ronen, Y. Editor, CRC Press, 1988.
- [13] e. a. A. de Crécy. "The BEMUSE Programme: Results of the First Part Concerning the LOFT L2-5 Test". *Proceedings of 14th International Conference on Nuclear Engineering* (2006).
- [14] B. Iooss y P. Lemaitre. *A review on global sensitivity analysis methods*. Uncertainty management in Simulation-Optimization of Complex Systems: Algorithms y Applications, Springer, 2015.
- [15] J. Zhang, Z. Umidova y A. Dethioux. *Sensitivity and uncertainty analysis using a statistical sample of input values*. Modelling of Water Cooled Fuel Including Design Basis y Severe Accidents, Proceedings of a Technical Meeting Held in Chengdu, IAEA-TECDOC-CD-1775, 2015.

7. Conclusiones y trabajo a futuro

En este trabajo se desarrollaron modelos de pastillas y vainas combustibles que ingresan entre los denominados Materiales Tecnológicamente Avanzados, tanto para condiciones de operación normal como para accidentes tipo LOCA. Todos ellos se han incluido y testeado dentro del código DIONISIO.

Para combustibles propiamente dichos, se han desarrollado modelos de óxidos de torio y de uranio dopado con partículas de cromo. Para el caso del óxido de torio, fue necesario incluir dentro de DIONISIO el ciclo de este combustible en forma completa desarrollando modelos de evolución y quemado simplificados a partir de códigos neutrónicos como el CONDOR. Su performance se comparó contra experimentos tomados de la literatura y contra predicciones del propio código neutrónico. La comparación de los resultados de DIONISIO, relativos a la evolución de las especies involucradas, con los provistos por CONDOR, permite corroborar la obtención de una muy buena aproximación mediante un modelo relativamente simple desde el punto de vista computacional. Esto aporta autonomía al código de combustibles, así como capacidad de simular el comportamiento de materiales alternativos sin necesidad de recurrir continuamente a códigos neutrónicos dedicados. El estado actual del modelo abre la posibilidad de extender la cadena del torio, además de incorporar nuevas cadenas de decaimiento, de forma relativamente sencilla, que permitan analizar el comportamiento del combustible no sólo durante su irradiación, sino en el período de decaimiento luego de su extracción del reactor.

Para el caso de combustible dopados se incluyó un modelo para liberación de gases de fisión en el código DIONISIO, pudiendo reproducir una simulación completa de combustible dopado. Este modelo fue contrastado con los experimentos IFA 716 e IFA 677. En la comparación de los resultados con el experimento IFA 716, se observó una sobrestimación de la presión, la elongación y la liberación de gases de fisión. Esto se puede atribuir a la falta de datos acerca de la geometría del *dishing* de las pastillas, dado que no estaba especificado en la bibliografía. Por otro lado, los resultados se contrastaron exitosamente con el experimento IFA 677, donde se observó un aumento abrupto de la presión aproximadamente a los 250 días que no es coherente con las concentraciones de dopantes ni con la historia previa de la presión. Se estima que esto se debe a que falló el instrumento de medición.

En cuanto a las vainas combustibles, se ha incluido en el código combustible DIONISIO una librería de propiedades de vainas compuesta de aleaciones de FeCrAl. Este sistema de modelos fue contrastado contra *benchmarks* y un experimento termohidráulico realizado en el KIT denominado QUENCH-19. Para los *benchmarks*, los resultados obtenidos fueron comparados con vainas de Zry-4 en idénticas condiciones, observándose que los tiempos necesarios para alcanzar roturas y fallas se incrementan para dos de los tres experimentos.

Para el experimento termohidráulico QUENCH-19, la temperatura exterior de la vaina fue reproducida y comparada con los datos experimentales. La liberación de hidrógeno predicha por nuestros modelos arrojó un resultado conservativo.

Así mismo se incluyó también una librería de propiedades de vainas compuesta de aleaciones de Zr recubiertas con Cromo. Una de las mejoras más relevantes introducidas en el código para este tipo de materiales fue remallar el dominio de las vainas para incluir elementos en la zona exterior que representen el recubrimiento. Este sistema de modelos fue contrastado contra *benchmarks* y un experimento termohidráulico llamado CODEX-ATF. Para los *benchmarks* la presión de explosión fue reproducida con un error de menos del 6 % para 3 de los 4 casos y con un error de menos del 20 % para el caso restante. La deformación circunferencial máxima fue sobreestimada. Para el experimento termohidráulico, la temperatura exterior de la vaina fue reproducida con excepción del pico final donde se produce un eutéctico de bajo punto de fusión (aproximadamente 1400°C). La liberación de hidrógeno predicha por nuestros modelos necesita ser mejorada. Debe tenerse en cuenta que los experimentos de este tipo simulan un manojo de barras y una carcaza exterior que, al ser de Zry-4, también contribuye a la liberación de H a la atmósfera, por lo que un código de barra como DIONISIO presenta limitaciones obvias para simularlos.

Finalmente, se realizaron comparaciones integrales con experimentos nucleares de alta complejidad, provistos por el proyecto de la IAEA ATF-TS, del que la sección Códigos y Modelos ha participado. Con este material se evaluó el comportamiento de los distintos modelos incluidos en DIONISIO y su interacción con el resto de los modelos preexistentes del código. En general, los resultados obtenidos son satisfactorios, mostrando una mejora significativa al comparar con resultados provistos por otros códigos y con los datos experimentales disponibles.

Trabajos a futuro

La construcción de una librería de materiales ATF no culmina en la lista elaborada en este trabajo, sino que representa un tema continuo de desarrollo e imprevisible debido a la naturaleza experimental de muchos de los materiales estudiados a nivel de laboratorio. Claramente no todos esos materiales terminarán formando parte de futuros reactores en etapa de producción, o quizás lo sean en un futuro lejano. Es por eso que los trabajos a futuros relacionados con esta temática son tan extensos como la propia tesis. A modo de resumen breve, podemos mencionar una lista de posibles líneas de investigación de interés para DIONISIO:

- No se han incluido modelos de vainas cerámicas, especialmente el CSi, material sobre el que se han realizado una gran variedad de ensayos en numerosos laboratorios del planeta. Si bien no figura entre los posibles candidatos inmediatos para construir ATFs, desarrollar modelos sobre este cerámico es estratégicamente recomendable.
- En línea con el punto anterior, los combustibles TRISO son considerados en reactores

de generación IV refrigerados por gas. Este tipo de combustibles, de larga historia en el pasado, forman parte de los ATF, contienen capas de CSI para aislar el material físil del entorno, además de una capa de CCI muy porosa para acumulación de gases. Desarrollar modelos TRISO es una de las líneas en consideración dentro de Códigos y Modelos.

- Para finalizar, uno de los principales fenómenos que se desea evitar en materiales ATF es el de captura de hidrógeno por parte del material de la vaina, por las catastróficas consecuencias que su liberación tiene en caso de accidentes. Por ese motivo es sumamente importante incluir dentro del código modelos mejorados de captura, liberación y reacción de hidrógeno con el material de la vaina.

A. Apéndice

Funciones de secciones eficaces térmicas y rápidas

En este apéndice presentamos el detalle de los modelos desarrollados para las secciones eficaces de absorción y fisión de neutrones térmicos y rápidos para distintos compuestos de isótopos de la cadena de decaimiento del ^{232}Th , explicados en la sección 3.2. Los modelos se basan en la Ecuación 3.12 cuyos coeficientes c_i dependen cúbicamente del contenido q de PuO_2 .

Tabla A.1: Coeficientes principales de sección eficaz térmica de absorción y de fisión para ^{232}Th , ^{233}Th , ^{233}Pa , ^{233}U , y ^{234}U .

Especies	Coeficientes principales (σ)			
^{232}Th	$\mathbf{c}_a =$	$\begin{bmatrix} 4,2717 & -0,0928 & 0,0023 & -2,6777 \times 10^{-5} \\ 0,0024 & 3,9048 \times 10^{-4} & -3,7240 \times 10^{-5} & 1,4081 \times 10^{-6} \\ -0,3987 & 0,1313 & -0,0097 & 2,2798 \times 10^{-4} \\ -1,8872 \times 10^{-4} & 1,43037 \times 10^{-5} & 9,9990 \times 10^{-7} & -6,6474 \times 10^{-8} \\ 1,2183 & -0,4140 & 0,0360 & -8,5268 \times 10^{-4} \\ 1,9851 \times 10^{-6} & 2,2864 \times 10^{-7} & -6,1677 \times 10^{-8} & 2,3014 \times 10^{-9} \\ -0,7777 & 0,2783 & -0,0239 & 5,7585 \times 10^{-4} \\ 0,0011 & 4,4209 \times 10^{-4} & -1,1469 \times 10^{-4} & 3,6365 \times 10^{-6} \\ -1,7336 \times 10^{-5} & -1,2232 \times 10^{-5} & 2,0886 \times 10^{-6} & -6,8778 \times 10^{-8} \\ 5,5400 \times 10^{-5} & 4,5137 \times 10^{-4} & -4,6895 \times 10^{-5} & 1,2912 \times 10^{-6} \end{bmatrix}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$	
^{233}Th	$\mathbf{c}_a =$	$\begin{bmatrix} 8,4520 \times 10^{+2} & -17,8189 & 6,6083 \times 10^{-1} & -1,3830 \times 10^{-2} \\ 4,3546 \times 10^{-1} & 6,0248 \times 10^{-2} & -4,6603 \times 10^{-3} & 1,8572 \times 10^{-4} \\ 14,8376 & -2,0864 & 4,7888 \times 10^{-1} & -1,7247 \times 10^{-2} \\ -2,4819 \times 10^{-2} & 7,2646 \times 10^{-3} & -5,8717 \times 10^{-4} & 1,3826 \times 10^{-5} \\ -21,2892 & -3,4401 & 3,8184 \times 10^{-1} & 5,9183 \times 10^{-3} \\ 1,5766 \times 10^{-4} & -5,1523 \times 10^{-5} & 4,3722 \times 10^{-6} & -1,0957 \times 10^{-7} \\ 25,5216 & 1,7599 & -1,7865 \times 10^{-1} & -3,8869 \times 10^{-3} \\ -5,9055 \times 10^{-2} & 1,6618 \times 10^{-1} & -2,8961 \times 10^{-2} & 8,7730 \times 10^{-4} \\ -5,2868 \times 10^{-4} & -1,2123 \times 10^{-3} & 2,0513 \times 10^{-4} & -6,5180 \times 10^{-6} \\ 1,3159 \times 10^{-1} & -8,9981 \times 10^{-3} & 2,1853 \times 10^{-3} & -9,0289 \times 10^{-5} \end{bmatrix}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$	

Continúa en la siguiente página

Tabla A.1: Continued

Especies	Coeficientes principales (σ)			
$\mathbf{c}_f =$	$\begin{bmatrix} 8,8025 & -1,7901 \times 10^{-1} & 6,6484 \times 10^{-3} & -1,3912 \times 10^{-4} \\ 4,3545 \times 10^{-3} & 6,2995 \times 10^{-6} & -4,9482 \times 10^{-5} & 1,9351 \times 10^{-6} \\ 1,4886 \times 10^{-1} & -2,0725 \times 10^{-2} & 4,7800 \times 10^{-3} & -1,7223 \times 10^{-4} \\ -2,4874 \times 10^{-4} & 7,2560 \times 10^{-5} & -5,8540 \times 10^{-6} & 1,3766 \times 10^{-7} \\ -2,1437 \times 10^{-1} & -3,4097 \times 10^{-2} & 3,7849 \times 10^{-3} & 5,9828 \times 10^{-5} \\ 1,5811 \times 10^{-6} & -5,1615 \times 10^{-7} & 4,3772 \times 10^{-8} & -1,0964 \times 10^{-9} \\ 2,5607 \times 10^{-1} & 1,7741 \times 10^{-2} & -1,7644 \times 10^{-3} & -3,9446 \times 10^{-5} \\ -5,7308 \times 10^{-4} & 1,6441 \times 10^{-3} & -2,8745 \times 10^{-4} & 8,7147 \times 10^{-6} \\ -5,5008 \times 10^{-6} & -1,1918 \times 10^{-5} & 2,0300 \times 10^{-6} & -6,4607 \times 10^{-8} \\ 1,3286 \times 10^{-3} & -9,9123 \times 10^{-5} & 2,2145 \times 10^{-5} & -9,0521 \times 10^{-7} \end{bmatrix}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$		
$^{233}\text{Pa} \quad \mathbf{c}_a =$	$\begin{bmatrix} 22,7164 & -9,2398 \times 10^{-1} & 8,6342 \times 10^{-2} & -2,5621 \times 10^{-3} \\ -2,1600 \times 10^{-2} & 1,7949 \times 10^{-2} & -2,4741 \times 10^{-3} & 7,5684 \times 10^{-5} \\ 1,0283 & -3,8520 \times 10^{-1} & 5,5168 \times 10^{-2} & -1,4547 \times 10^{-3} \\ -3,4686 \times 10^{-4} & 5,5848 \times 10^{-5} & 3,5871 \times 10^{-6} & -2,2943 \times 10^{-7} \\ -2,9285 & 1,2079 & -1,6236 \times 10^{-1} & 4,3749 \times 10^{-3} \\ 3,2828 \times 10^{-6} & -1,0377 \times 10^{-6} & 7,3071 \times 10^{-8} & -1,5508 \times 10^{-9} \\ 2,8065 & -1,1139 & 1,5027 \times 10^{-1} & -4,1391 \times 10^{-3} \\ 9,6840 \times 10^{-3} & -2,2079 \times 10^{-3} & 2,3530 \times 10^{-4} & -8,3201 \times 10^{-6} \\ -1,0193 \times 10^{-4} & 1,9071 \times 10^{-5} & -2,5738 \times 10^{-6} & 8,5843 \times 10^{-8} \\ 8,9868 \times 10^{-3} & -3,3293 \times 10^{-3} & 4,9630 \times 10^{-4} & -1,4250 \times 10^{-5} \end{bmatrix}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$		
$^{233}\text{U} \quad \mathbf{c}_a =$	$\begin{bmatrix} 333,8800 & -6,7948 & 2,5718 \times 10^{-1} & -53706 \times 10^{-3} \\ 1,5799 \times 10^{-1} & 2,8335 \times 10^{-2} & -2,4136 \times 10^{-3} & 8,7394 \times 10^{-5} \\ 5,6093 & -6,9035 \times 10^{-1} & 1,6941 \times 10^{-1} & -6,1453 \times 10^{-3} \\ -9,2468 \times 10^{-3} & 2,6714 \times 10^{-3} & -2,1396 \times 10^{-4} & 5,0060 \times 10^{-6} \\ -8,3173 & -1,2224 & 1,3590 \times 10^{-1} & 2,1113 \times 10^{-3} \\ 5,8951 \times 10^{-5} & -1,9266 \times 10^{-5} & 1,6347 \times 10^{-6} & -4,0950 \times 10^{-8} \\ 9,7755 & 7,2200 \times 10^{-1} & -6,3770 \times 10^{-2} & -1,4079 \times 10^{-3} \\ -1,7532 \times 10^{-2} & 5,6459 \times 10^{-2} & -1,0028 \times 10^{-2} & 3,0551 \times 10^{-4} \\ -2,4563 \times 10^{-4} & -3,9309 \times 10^{-4} & 6,9352 \times 10^{-5} & -2,2251 \times 10^{-6} \\ 5,2717 \times 10^{-2} & -6,1794 \times 10^{-3} & 9,4142 \times 10^{-4} & -3,5547 \times 10^{-5} \end{bmatrix}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$		

Continúa en la siguiente página

Tabla A.1: Continued

Especies	Coeficientes principales (σ)				
$\mathbf{c}_f =$	304,2792	-6,1847	$2,3651 \times 10^{-1}$	$-4,9459 \times 10^{-3}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$
	$1,3963 \times 10^{-1}$	$2,5338 \times 10^{-2}$	$-2,1972 \times 10^{-3}$	$8,0015 \times 10^{-5}$	
	5,2116	$-6,3080 \times 10^{-1}$	$1,5393 \times 10^{-1}$	$-5,5535 \times 10^{-3}$	
	$-8,3437 \times 10^{-3}$	$2,4338 \times 10^{-3}$	$-1,9545 \times 10^{-4}$	$4,5813 \times 10^{-6}$	
	-7,7711	-1,0877	$1,1838 \times 10^{-1}$	$1,9631 \times 10^{-3}$	
	$5,3252 \times 10^{-5}$	$-1,7507 \times 10^{-5}$	$1,4905 \times 10^{-6}$	$-3,7428 \times 10^{-8}$	
	9,0804	$6,6094 \times 10^{-1}$	$-5,6419 \times 10^{-2}$	$-1,2737 \times 10^{-3}$	
	$-1,6225 \times 10^{-2}$	$5,1367 \times 10^{-2}$	$-9,0370 \times 10^{-3}$	$2,7444 \times 10^{-4}$	
	$-2,2475 \times 10^{-4}$	$-3,5744 \times 10^{-4}$	$6,2466 \times 10^{-5}$	$-1,9969 \times 10^{-6}$	
	$4,9128 \times 10^{-2}$	$-6,0491 \times 10^{-3}$	$8,9829 \times 10^{-4}$	$-3,3257 \times 10^{-5}$	
$^{234}\text{U} \quad \mathbf{c}_a =$	56,7375	-1,3598	$4,9878 \times 10^{-2}$	$-1,0440 \times 10^{-3}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$
	$3,4089 \times 10^{-2}$	$4,4873 \times 10^{-3}$	$-3,3558 \times 10^{-4}$	$1,3619 \times 10^{-5}$	
	1,1055	$-1,6173 \times 10^{-1}$	$3,6861 \times 10^{-2}$	$-1,3321 \times 10^{-3}$	
	$-1,9141 \times 10^{-3}$	$5,5797 \times 10^{-4}$	$-4,5061 \times 10^{-5}$	$1,0604 \times 10^{-6}$	
	-1,5599	$-2,7321 \times 10^{-1}$	$3,0892 \times 10^{-2}$	$4,3637 \times 10^{-4}$	
	$1,2151 \times 10^{-5}$	$-3,9543 \times 10^{-6}$	$3,3471 \times 10^{-7}$	$-8,3729 \times 10^{-9}$	
	1,8983	$1,3167 \times 10^{-1}$	$-1,4289 \times 10^{-2}$	$-2,9399 \times 10^{-4}$	
	$-4,5396 \times 10^{-3}$	$1,2921 \times 10^{-2}$	$-2,2600 \times 10^{-3}$	$6,8521 \times 10^{-5}$	
	$-3,9387 \times 10^{-5}$	$-9,5229 \times 10^{-5}$	$1,6091 \times 10^{-5}$	$-5,1147 \times 10^{-7}$	
	$9,7142 \times 10^{-3}$	$-4,5827 \times 10^{-4}$	$1,5155 \times 10^{-4}$	$-6,5891 \times 10^{-6}$	
$\mathbf{c}_f =$	$2,5221 \times 10^{-1}$	$-6,1917 \times 10^{-3}$	$2,2668 \times 10^{-4}$	$-4,7460 \times 10^{-6}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$
	$1,5585 \times 10^{-4}$	$2,0641 \times 10^{-5}$	$-1,5403 \times 10^{-6}$	$6,2296 \times 10^{-8}$	
	$5,0019 \times 10^{-3}$	$-7,3415 \times 10^{-4}$	$1,6750 \times 10^{-4}$	$-6,0605 \times 10^{-6}$	
	$-8,7292 \times 10^{-6}$	$2,5387 \times 10^{-6}$	$-2,0485 \times 10^{-7}$	$4,8174 \times 10^{-9}$	
	$-7,0509 \times 10^{-3}$	$-1,2499 \times 10^{-3}$	$1,4216 \times 10^{-4}$	$1,9673 \times 10^{-6}$	
	$5,5419 \times 10^{-8}$	$-1,8009 \times 10^{-8}$	$1,5230 \times 10^{-9}$	$-3,8076 \times 10^{-11}$	
	$8,5959 \times 10^{-3}$	$5,9562 \times 10^{-4}$	$-6,5391 \times 10^{-5}$	$-1,3395 \times 10^{-6}$	
	$-2,0371 \times 10^{-5}$	$5,8766 \times 10^{-5}$	$-1,0301 \times 10^{-5}$	$3,1247 \times 10^{-7}$	
	$-1,8079 \times 10^{-7}$	$-4,3343 \times 10^{-7}$	$7,3385 \times 10^{-8}$	$-2,3342 \times 10^{-9}$	
	$4,3888 \times 10^{-5}$	$-1,9213 \times 10^{-6}$	$6,7317 \times 10^{-7}$	$-2,9575 \times 10^{-8}$	

Tabla A.2: Coeficientes principales de sección eficaz rápida de absorción y de fisión para ^{232}Th , ^{233}Th , ^{233}Pa , ^{233}U y ^{234}U .

Especies		Coeficientes principales (σ)			
^{233}Th	$\mathbf{c}_a =$	18,3035	$-7,7486 \times 10^{-1}$	$2,7392 \times 10^{-2}$	$-4,6464 \times 10^{-4}$
		$8,6659 \times 10^{-2}$	$-3,8077 \times 10^{-2}$	$3,3543 \times 10^{-3}$	$-8,4825 \times 10^{-5}$
		$9,0904 \times 10^{-1}$	$-2,1349 \times 10^{-1}$	$5,5755 \times 10^{-2}$	$-1,6886 \times 10^{-3}$
		$-1,3570 \times 10^{-3}$	$7,5998 \times 10^{-4}$	$-7,4360 \times 10^{-5}$	$2,0084 \times 10^{-6}$
		$-1,8882 \times 10^{-1}$	$-6,5300 \times 10^{-1}$	$-2,0487 \times 10^{-2}$	$1,1278 \times 10^{-3}$
		$4,2274 \times 10^{-6}$	$-2,8572 \times 10^{-6}$	$3,0726 \times 10^{-7}$	$-8,7968 \times 10^{-9}$
		1,3635	$7,3358 \times 10^{-1}$	$-1,7344 \times 10^{-2}$	$7,4922 \times 10^{-5}$
		$-4,7595 \times 10^{-2}$	$3,1984 \times 10^{-2}$	$-3,2075 \times 10^{-3}$	$8,5284 \times 10^{-5}$
		$4,3607 \times 10^{-4}$	$-2,3567 \times 10^{-4}$	$2,2638 \times 10^{-5}$	$-5,9767 \times 10^{-7}$
		$-4,4575 \times 10^{-3}$	$-6,2527 \times 10^{-3}$	$9,0832 \times 10^{-4}$	$-2,7141 \times 10^{-5}$
^{233}Th	$\mathbf{c}_f =$	$3,8368 \times 10^{-1}$	$-9,1027 \times 10^{-3}$	$3,4558 \times 10^{-4}$	$-6,3407 \times 10^{-6}$
		$9,4606 \times 10^{-4}$	$-3,9421 \times 10^{-4}$	$3,3868 \times 10^{-5}$	$-8,4080 \times 10^{-7}$
		$1,1126 \times 10^{-2}$	$-2,4493 \times 10^{-3}$	$6,1573 \times 10^{-4}$	$-1,8418 \times 10^{-5}$
		$-1,5952 \times 10^{-5}$	$8,3037 \times 10^{-6}$	$-7,954 \times 10^{-7}$	$2,1218 \times 10^{-8}$
		$-4,9333 \times 10^{-3}$	$-6,8697 \times 10^{-3}$	$-2,6169 \times 10^{-4}$	$1,3135 \times 10^{-5}$
		$5,4854 \times 10^{-8}$	$-3,2512 \times 10^{-8}$	$3,3967 \times 10^{-9}$	$-9,5864 \times 10^{-11}$
		$1,9241 \times 10^{-2}$	$7,8141 \times 10^{-3}$	$-1,6304 \times 10^{-4}$	$2,1837 \times 10^{-7}$
		$-5,1962 \times 10^{-4}$	$3,4945 \times 10^{-4}$	$-3,4679 \times 10^{-5}$	$9,1513 \times 10^{-7}$
		$4,7454 \times 10^{-6}$	$-2,5802 \times 10^{-6}$	$2,4609 \times 10^{-7}$	$-6,4563 \times 10^{-9}$
		$-4,4726 \times 10^{-5}$	$-6,7664 \times 10^{-5}$	$9,8274 \times 10^{-6}$	$-2,9280 \times 10^{-7}$
^{233}Pa	$\mathbf{c}_a =$	29,2386	-1,1230	$4,8792 \times 10^{-2}$	$-1,0068 \times 10^{-3}$
		$-1,4183 \times 10^{-1}$	$1,8465 \times 10^{-2}$	$-1,5148 \times 10^{-3}$	$4,1720 \times 10^{-5}$
		$9,3742 \times 10^{-1}$	$-2,2152 \times 10^{-2}$	$1,6614 \times 10^{-2}$	$-4,2624 \times 10^{-4}$
		$1,2896 \times 10^{-3}$	$-9,8881 \times 10^{-5}$	$7,2718 \times 10^{-6}$	$-2,3527 \times 10^{-7}$
		-2,2739	$-1,7193 \times 10^{-1}$	$-1,8419 \times 10^{-2}$	$5,5600 \times 10^{-4}$
		$-3,3405 \times 10^{-6}$	$1,3688 \times 10^{-7}$	$-4,5228 \times 10^{-9}$	$2,3815 \times 10^{-10}$
		3,1791	$1,3083 \times 10^{-1}$	$1,1189 \times 10^{-2}$	$-3,5255 \times 10^{-4}$
		$1,1529 \times 10^{-2}$	$6,2202 \times 10^{-3}$	$-7,1276 \times 10^{-4}$	$1,7747 \times 10^{-5}$
		$-1,4574 \times 10^{-4}$	$-6,2087 \times 10^{-5}$	$6,8463 \times 10^{-6}$	$-1,7653 \times 10^{-7}$
		$6,3277 \times 10^{-3}$	$1,6915 \times 10^{-3}$	$-3,2652 \times 10^{-5}$	$-4,3824 \times 10^{-8}$

Continúa en la siguiente página

Tabla A.2: Continued

Especies	Coeficientes principales (σ)				
	$\mathbf{c}_f =$	$1,9633 \times 10^{-1}$	$1,2013 \times 10^{-3}$	$-3,6879 \times 10^{-5}$	$8,5609 \times 10^{-7}$
		$5,9326 \times 10^{-5}$	$1,7226 \times 10^{-6}$	$3,7771 \times 10^{-7}$	$-2,4531 \times 10^{-8}$
		$-5,0571 \times 10^{-3}$	$7,0559 \times 10^{-4}$	$-1,1478 \times 10^{-4}$	$2,6660 \times 10^{-6}$
		$-5,7177 \times 10^{-7}$	$1,0178 \times 10^{-7}$	$-1,4903 \times 10^{-8}$	$5,4589 \times 10^{-10}$
		$8,7008 \times 10^{-3}$	$8,1394 \times 10^{-4}$	$1,1390 \times 10^{-4}$	$-3,4112 \times 10^{-6}$
		$5,8820 \times 10^{-9}$	$-2,1898 \times 10^{-9}$	$2,1368 \times 10^{-10}$	$-5,9102 \times 10^{-12}$
		$-1,3538 \times 10^{-2}$	$-9,4593 \times 10^{-4}$	$-2,7132 \times 10^{-5}$	$1,1166 \times 10^{-6}$
		$1,0706 \times 10^{-4}$	$-6,8545 \times 10^{-5}$	$5,5801 \times 10^{-6}$	$-1,2275 \times 10^{-7}$
		$-9,5840 \times 10^{-7}$	$5,4139 \times 10^{-7}$	$-4,5761 \times 10^{-8}$	$1,0625 \times 10^{-9}$
		$1,5664 \times 10^{-6}$	$8,2866 \times 10^{-6}$	$-1,2300 \times 10^{-6}$	$3,2548 \times 10^{-8}$
^{233}U	$\mathbf{c}_a =$	29,0293	-1,0086	$4,2469 \times 10^{-2}$	$-8,7051 \times 10^{-4}$
		$-3,7038 \times 10^{-2}$	$-6,7225 \times 10^{-3}$	$6,1859 \times 10^{-4}$	$-1,3008 \times 10^{-5}$
		$6,2658 \times 10^{-2}$	$-1,0601 \times 10^{-1}$	$3,8094 \times 10^{-2}$	$-1,0779 \times 10^{-3}$
		$7,1894 \times 10^{-5}$	$2,9968 \times 10^{-4}$	$-3,1277 \times 10^{-5}$	$8,3286 \times 10^{-7}$
		$7,2808 \times 10^{-1}$	$-6,0006 \times 10^{-1}$	$-1,2592 \times 10^{-2}$	$6,6064 \times 10^{-4}$
		$-7,0610 \times 10^{-8}$	$-1,2246 \times 10^{-6}$	$1,4649 \times 10^{-7}$	$-4,2655 \times 10^{-9}$
		1,3706	$5,7464 \times 10^{-1}$	$-1,0020 \times 10^{-2}$	$3,2418 \times 10^{-5}$
		$-2,0847 \times 10^{-2}$	$2,2071 \times 10^{-2}$	$-2,1758 \times 10^{-3}$	$5,6391 \times 10^{-5}$
		$1,8221 \times 10^{-4}$	$-1,6092 \times 10^{-4}$	$1,5662 \times 10^{-5}$	$-4,1190 \times 10^{-7}$
		$-1,0836 \times 10^{-3}$	$-3,6913 \times 10^{-3}$	$5,4247 \times 10^{-4}$	$-1,5728 \times 10^{-5}$
	$\mathbf{c}_f =$	21,6834	$-6,7579 \times 10^{-1}$	$3,5466 \times 10^{-2}$	$-9,3122 \times 10^{-4}$
		$1,9933 \times 10^{-1}$	$-2,2281 \times 10^{-2}$	$8,2101 \times 10^{-4}$	$-2,6592 \times 10^{-6}$
		$7,0520 \times 10^{-1}$	$-7,8040 \times 10^{-2}$	$3,1641 \times 10^{-2}$	$-9,2709 \times 10^{-4}$
		$-4,2143 \times 10^{-3}$	$5,6751 \times 10^{-4}$	$-3,2488 \times 10^{-5}$	$5,6363 \times 10^{-7}$
		$-7,5986 \times 10^{-1}$	$-5,5707 \times 10^{-1}$	$-5,7641 \times 10^{-3}$	$4,8004 \times 10^{-4}$
		$2,2027 \times 10^{-5}$	$-2,6344 \times 10^{-6}$	$1,5197 \times 10^{-7}$	$-2,7939 \times 10^{-9}$
		1,8215	$5,4836 \times 10^{-1}$	$-1,3842 \times 10^{-2}$	$1,3192 \times 10^{-4}$
		$-1,6006 \times 10^{-2}$	$1,9690 \times 10^{-2}$	$-1,9985 \times 10^{-3}$	$5,2595 \times 10^{-5}$
		$1,1832 \times 10^{-4}$	$-1,3919 \times 10^{-4}$	$1,4076 \times 10^{-5}$	$-3,7650 \times 10^{-7}$
		$2,4576 \times 10^{-3}$	$-4,1587 \times 10^{-3}$	$5,5961 \times 10^{-4}$	$-1,6041 \times 10^{-5}$

Continúa en la siguiente página

Tabla A.2: Continued

Especies		Coeficientes principales (σ)			
^{234}U	$\mathbf{c}_a =$	$\begin{bmatrix} 22,7442 & -7,2312 \times 10^{-1} & 3,8997 \times 10^{-2} & -9,2981 \times 10^{-4} \\ -1,7351 \times 10^{-1} & 2,7721 \times 10^{-2} & -2,5489 \times 10^{-3} & 7,1024 \times 10^{-5} \\ 2,0396 & -8,5192 \times 10^{-2} & 1,1510 \times 10^{-2} & -2,5433 \times 10^{-4} \\ 6,4532 \times 10^{-4} & -9,2359 \times 10^{-5} & 1,5092 \times 10^{-5} & -5,3664 \times 10^{-7} \\ -4,8925 & 1,9742 \times 10^{-1} & -2,7084 \times 10^{-2} & 6,6428 \times 10^{-4} \\ 2,2070 \times 10^{-6} & -7,9297 \times 10^{-7} & 3,1803 \times 10^{-8} & -9,8835 \times 10^{-11} \\ 4,0113 & -1,7075 \times 10^{-1} & 2,0285 \times 10^{-2} & -4,9992 \times 10^{-4} \\ 8,2510 \times 10^{-3} & -1,5482 \times 10^{-3} & 1,1169 \times 10^{-5} & -2,2991 \times 10^{-7} \\ -3,2814 \times 10^{-4} & 2,5641 \times 10^{-5} & -5,8720 \times 10^{-7} & 3,0600 \times 10^{-9} \\ 4,5323 \times 10^{-2} & -8,3545 \times 10^{-4} & 3,3239 \times 10^{-5} & -4,1722 \times 10^{-7} \end{bmatrix}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$		
	$\mathbf{c}_f =$	$\begin{bmatrix} 6,0096 \times 10^{-1} & 6,0518 \times 10^{-3} & -3,1879 \times 10^{-4} & 7,7567 \times 10^{-6} \\ -4,4188 \times 10^{-4} & 7,4624 \times 10^{-5} & -1,9567 \times 10^{-6} & -3,4470 \times 10^{-8} \\ -1,1988 \times 10^{-2} & 1,8522 \times 10^{-3} & -3,1249 \times 10^{-4} & 7,6825 \times 10^{-6} \\ 1,1358 \times 10^{-5} & -3,1243 \times 10^{-6} & 2,2002 \times 10^{-7} & -4,5886 \times 10^{-9} \\ 1,8324 \times 10^{-2} & 2,0258 \times 10^{-3} & 3,0436 \times 10^{-4} & -9,4140 \times 10^{-6} \\ -5,5424 \times 10^{-8} & 1,6048 \times 10^{-8} & -1,2649 \times 10^{-9} & 2,9762 \times 10^{-11} \\ -3,3183 \times 10^{-2} & -2,6733 \times 10^{-3} & -5,4778 \times 10^{-5} & 2,6106 \times 10^{-6} \\ 2,7409 \times 10^{-4} & -1,7799 \times 10^{-4} & 1,5110 \times 10^{-5} & -3,5162 \times 10^{-7} \\ -2,5473 \times 10^{-6} & 1,3771 \times 10^{-6} & -1,1921 \times 10^{-7} & 2,8639 \times 10^{-9} \\ 2,1980 \times 10^{-5} & 2,7370 \times 10^{-5} & -4,0116 \times 10^{-6} & 1,1317 \times 10^{-7} \end{bmatrix}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ q \\ q^2 \\ q^3 \end{pmatrix}$		