

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

**Simulación multi-escala del comportamiento de elementos
combustibles en condiciones de irradiación dentro de un
reactor nuclear^(*)**

por Ing. Mauricio Exequiel Cazado

Director

Dr. Alejandro Soba

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

República Argentina

2023

A mi familia

Agradecimientos

Al Dr. Alejandro Soba, mi director, por su gran dedicación, paciencia y por todas las oportunidades brindadas en mi trayecto profesional y personal.

A la Dra. Alicia Denis, por haberme otorgado la posibilidad de ingresar a la Sección Códigos y Modelos, por sus largas charlas alentadoras y por todos los consejos dados.

A toda la Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear, en especial al Lic. Daniel Marchi, a la Lic. Verónica Trimarco y al Lic. Federico Kaufmann, por poner a disposición los recursos necesarios para llevar a cabo este trabajo de investigación.

A las autoridades del Instituto Sabato, por todo el apoyo y el acompañamiento brindado desde mi comienzo en esta casa de estudios en el año 2012.

Al Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas, por haberme otorgado una beca doctoral que permitió dedicarme exclusivamente a realizar esta tarea.

Al Instituto de Tecnología de Karlsruhe, en especial al Dr. Victor H. Sánchez-Espinoza que en conjunto con Alejandro Soba y Carla Notari, del Instituto Dan Beninson, hicieron posible la realización de una estadía de investigación en Alemania que fue una parte importante para el desarrollo de esta tesis.

A mis compañeros de la Sección Códigos y Modelos, por todos los momentos compartidos. En especial, al Dr. Goldberg que me brindó su ayuda en múltiples ocasiones.

A todos mis amigos, porque la risa está ahí, aun en la distancia espacial y temporal.

A Ignacio, porque su acompañamiento hizo posible disfrutar este camino.

A toda mi familia, a quienes dedico este trabajo, porque sin su aliento constante, ayuda, cariño y comprensión sería muy difícil aceptar nuevos desafíos.

Mauricio Exequiel Cazado

Febrero 2023

Resumen

La Sección Códigos y Modelos, perteneciente a la Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear de la Comisión Nacional de Energía Atómica, ha desarrollado íntegramente un código denominado DIONISIO que se compone de un conjunto de modelos destinados a simular el comportamiento de combustibles nucleares bajo irradiación dentro de un reactor de potencia o de investigación, tanto en condiciones de operación normal como de accidente.

Siendo el objetivo de DIONISIO la simulación de los fenómenos que ocurren en el interior de una barra o placa combustible, esencialmente los relacionados con el material físil y su recubrimiento, el código aproxima la termohidráulica del canal circundante a los combustibles mediante modelos unidimensionales simplificados. Sin embargo, los fenómenos que ocurren en dicho entorno tienen un efecto clave en el desempeño del combustible ya que su función es la de extraer el calor que se genera en su interior. Esto significa que para reproducir de manera realista una barra o placa combustible se vuelve necesario extender los modelos termohidráulicos utilizados en DIONISIO.

Para reactores de potencia, en este trabajo se presenta un acople realizado entre DIONISIO y el código SubChanFlow (KIT – Alemania) que cuenta con modelos que describen detalladamente los procesos que ocurren en el fluido y en la interacción fluido-estructura cuando un combustible se somete a irradiación. Este acople presentó mejoras significativas en el cálculo de la temperatura exterior de la vaina y sus variables relacionadas, como espesor de la capa de óxido y captura de hidrógeno por la vaina. En cuanto a los reactores experimentales, se avanzó en la realización de un modelo aplicando el método de elementos finitos que consiste en resolver las ecuaciones de Navier-Stokes para el fluido alrededor de una placa combustible, alcanzando buenos resultados al comparar con problemas de referencia.

Además, se presentan nuevos modelos desarrollados en base a la difusión de defectos puntuales en la microestructura para evaluar cambios dimensionales que ocurren tanto en la vaina como en la pastilla combustible cuando son sometidas a irradiación en reactores de potencia. Los modelos consisten en el crecimiento por irradiación para vainas de aleaciones base zirconio y actualizaciones en los modelos de densificación e hinchamiento de pastillas de UO_2 . Estas actualizaciones de los modelos termofísicos y termohidráulicos permiten realizar simulaciones integrales de una barra combustible obteniéndose buenos resultados cuando se compara con datos experimentales disponibles en la literatura.

Palabras claves: DIONISIO, SubChanFlow, microestructura, combustible nuclear, aleaciones de zirconio

Abstract

The Codes and Models Section of the Nuclear Fuel Cycle Management of the National Atomic Energy Commission of Argentina has fully developed a code called DIONISIO, which consists of a set of models designed to simulate the behaviour of nuclear fuel under irradiation inside a power or research reactor, both under normal operation and in accident conditions.

Since the aim of DIONISIO is to simulate the phenomena occurring inside a fuel rod or plate, essentially those related to the fissile material and its cladding, the code approximates the thermohydraulics of the channel surrounding the fuels by means of simplified one-dimensional models. However, the phenomena occurring in such an environment have a decisive influence on the performance of the fuel, since its function is to dissipate the heat generated inside it. This means that for a realistic reproduction of a fuel rod or plate, it is necessary to extend the thermohydraulic models used in DIONISIO.

For power reactors, this work presents a coupling between DIONISIO and the SubChanFlow code (KIT - Germany), which has models that describe in detail the processes that occur in the fluid and in the fluid-structure interaction when a fuel is irradiated. This coupling has led to significant improvements in the calculation of the external temperature of the cladding and related variables, such as oxide layer thickness and hydrogen capture by the cladding. For the experimental reactors, progress has been made in the development of a finite element model consisting of solution of the Navier-Stokes equations for the fluid around a fuel plate, achieving good results when compared with reference problems.

In addition, new models developed based on the diffusion of point defects in the microstructure are presented to evaluate the dimensional changes that occur in both the sheath and the fuel pellet when they are subjected to irradiation in power reactors. The models consist of irradiation growth for zirconium-based alloy cladding and updates to the densification and swelling models for UO_2 pellets. These updates to the thermophysical and thermohydraulic models allow for comprehensive simulations of a fuel rod with good results when compared to experimental data available in the literature.

Keywords: DIONISIO, SubChanFlow, microstructure, nuclear fuel, zirconium-based alloys

Publicaciones y congresos

Publicaciones con referato

- Francisco Rotea, **Mauricio E. Cazado** y Alejandro Soba, “A model of fuel pellet swelling and its relation with grain growth”, *En preparación*
- **Mauricio E. Cazado**, Victor Hugo Sanchez-Espinoza y Alejandro Soba, “Coupling between DIONISIO and SubChanFlow:single channel and fuel rod cases”, *Nuclear Engineering and Design*, (Under evaluation)
- **Mauricio E. Cazado**, Ezequiel Goldberg, Martín A. Togneri, Alicia Denis y Alejandro Soba, “A new irradiation growth model for Zr-based components of nuclear reactors for the DIONISIO code”, *Nuclear Engineering and Design*, vol. 373, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2020.111009>.
- **Mauricio E. Cazado**, Alicia Denis, Alejandro Soba, “Implementation of a microstructural densification model in the DIONISIO nuclear fuel simulation code”, *Annals of Nuclear Energy*, vol. 152, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2020.108021>
- **Mauricio E. Cazado**, Alejandro Soba, Alicia Denis, “Variación de densidad de pastillas combustibles bajo irradiación”, *Revista SAM*, vol. 1, p. 32-41, 2021. ISSN 1668–4788
- Ezequiel Goldberg, **Mauricio E. Cazado**, Matías E. Loza Peralta, Alejandro Soba, “New module for simulating experiments without irradiation included in the DIONISIO 3.0 code”, *Nuclear Engineering and Design*, vol. 374, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2021.111067>
- Alejandro Soba, **Mauricio E. Cazado**, Guillaume Houzeaux, Albert Gutierrez-Milla, Mervi J. Mantsinen, Xavier Saez, “Validations of the radiation transport module NEUTRO: A deterministic solver for the neutron transport equation”, *Fusion Engineering and Design*, vol 169, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2021.112497>
- **Mauricio E. Cazado**, Alicia Denis, “Model of nuclear fuel pellets densification under irradiation and isothermal conditions: Application to UO₂ fuels”, *Journal of Nuclear Materials*, vol 510. 2018. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.08.029>

Congresos y reuniones científicas

- Francisco Rotea, **Mauricio E. Cazado**, Alejandro Soba, “Modelado del hinchamiento de pastillas combustibles bajo irradiación”, XLVI Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, Ciudad Autónoma de Buenos Aires, Argentina, 19–22 de diciembre de 2022.
- Francisco Rotea, **Mauricio E. Cazado**, Alejandro Soba, “Avances en el modelado del hinchamiento de pastillas combustibles bajo irradiación”, *Mecánica Computacional Vol. XXXIX*, p. 1141–1150 (artículo completo), XXXVIII Congreso Argentino de Mecánica Computacional MECOM 2022, Bahía Blanca, Argentina, 1–4 de noviembre de 2022.
- Martín E. González, Juan Campos, **Mauricio Cazado**, Alejandro Soba, “Desarrollo de un módulo de especies integrado al código DIONISIO”, *Mecánica Computacional Vol. XXXIX*, p. 1121–1130 (artículo completo), XXXVIII Congreso Argentino de Mecánica Computacional MECOM 2022, Bahía Blanca, Argentina, 1–4 de noviembre de 2022.
- **Mauricio E. Cazado**, Alejandro Soba, Alicia Denis, “Simulation of nuclear fuel experiments using DIONISIO FEM”, *Mecánica Computacional Vol. XXXVIII*, p. 339–347 (artículo completo), XXXVII Congreso Argentino de Mecánica Computacional MECOM 2021, Resistencia, Chaco, Argentina, 1–5 de noviembre de 2021.
- **Mauricio E. Cazado**, Alejandro Soba, “Simulación del comportamiento del fluido refrigerante en un combustible tipo PLACA en el código DIONISIO”, *Mecánica Computacional Vol. XXXVIII*, p. 349–357 (artículo completo), XXXVII Congreso Argentino de Mecánica Computacional MECOM 2021, Resistencia, Chaco, Argentina, 1–5 de noviembre de 2021.
- Alejandro Soba, Martín R. Lemes, Ezequiel Goldberg, Matías E. Loza Peralta, **Mauricio E. Cazado**, Martín E. González, Alicia Denis, “Accident conditions models in the DIONISIO 2.0 code”, *Fuel Modelling in Accident Conditions (FUMAC)*, IAEA–TECDOC–1889, 2019. <https://www.iaea.org/publications/13604/fuel-modelling-in-accident-conditions-fumac>
- **Mauricio E. Cazado**, Alejandro Soba, Alicia Denis, “Modelo de densificación de UO_2 dentro del código DIONISIO”, *Mecánica Computacional Vol. XXXVII*, p. 403–411 (artículo completo), XXIV Congreso sobre Métodos Numéricos y sus Aplicaciones ENIEF 2019, Santa Fe, Argentina, 5–7 de noviembre de 2019.
- Martín A. Togneri, **Mauricio E. Cazado**, Alejandro Soba, “Modelo de crecimiento por irradiación de vainas en combustibles nucleares bajo condiciones normales de operación”, *Mecánica Computacional Vol. XXXVII*, p. 499–508 (artículo completo),

XXIV Congreso sobre Métodos Numéricos y sus Aplicaciones ENIEF 2019, Santa Fe, Argentina, 5–7 de noviembre de 2019.

- **Mauricio E. Cazado**, Martín R. Lemes Lapasta, Edgar A. Bea, Ezequiel Golberg, Martín E. González, Matías E. Loza Peralta, Martín A. Togneri, Alejandro Soba, Alicia Denis, “Últimos modelos incluidos en el código DIONISIO 2.3”, XL Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, Ciudad Autónoma de Buenos Aires, Argentina, 5 y 6 de diciembre de 2018.
- Ezequiel Golberg, Matías E. Loza Peralta, Edgar A. Bea, **Mauricio E. Cazado**, Martín E. González, Martín R. Lemes Lapasta, Martín A. Togneri, Alejandro Soba, Alicia Denis, “Modelado tridimensional en el código DIONISIO”, XL Reunión Anual de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, Ciudad Autónoma de Buenos Aires, Argentina, 5 y 6 de diciembre de 2018.
- **Mauricio E. Cazado**, Alicia Denis, “Modelo de densificación de combustibles nucleares: Análisis paramétrico”, *Mecánica Computacional Vol. XXXVI*, p. 335–344 (artículo completo), XXII Congreso Argentino de Mecánica Computacional MECOM 2018, San Miguel de Tucumán, Argentina, 6–9 de noviembre de 2018.
- Matías E. Loza Peralta, Martín Lemes Lapasta, **Mauricio E. Cazado**, Alejandro Soba, “Cálculo de la temperatura del PLENUM en una barra combustible bajo irradiación en condiciones normales y de accidente con el código DIONISIO”, *Mecánica Computacional Vol. XXXVI*, p. 369–378 (artículo completo), XXII Congreso Argentino de Mecánica Computacional MECOM 2018, San Miguel de Tucumán, Argentina, 6–9 de noviembre de 2018.
- **Mauricio Cazado**, Alicia Denis, “Modeling fuel densification under irradiation conditions”, International Young Nuclear Congress and Women in Nuclear, IYNCWiN 2018, San Carlos de Bariloche, Argentina, 11–17 de marzo de 2018.

Índice

Índice de figuras	x
Índice de tablas	xvi
1. Introducción	1
1.1. Reactores nucleares de fisión	1
1.2. Barras y placas combustibles: requerimientos y diseños	4
1.3. Estudio del comportamiento del combustible nuclear	9
1.4. Objetivos y contenido de la tesis	13
Referencias	15
2. Modelos termohidráulicos	17
2.1. Modelo termohidráulico para reactores de potencia	18
2.1.1. Descripción de los códigos	20
2.1.2. Metodología del acople entre los códigos DIONISIO y SubChanFlow	25
2.1.3. Evaluación del acople	27
2.1.4. Validación del acople con datos experimentales	33
2.2. Modelos termohidráulico para reactores de investigación	38
2.2.1. Descripción del modelo para canales entre placas en DIONISIO . .	39
2.2.2. Resolución de las Ecuaciones de Navier-Stokes	41
2.2.3. Evaluación del nuevo modelo	48
Referencias	55
3. Modelos para vainas combustibles	58
3.1. Modelo de crecimiento por irradiación en vainas de aleaciones de zirconio .	59
3.1.1. Descripción del nuevo modelo de crecimiento inducido por irradia- ción para el código DIONISIO	62
3.1.2. Evaluación del modelo	68
3.1.3. Validación del modelo dentro del código DIONISIO	76
3.2. Modelos de crecimiento de óxido y captura de hidrógeno	81
Referencias	86
4. Modelos para pastillas combustibles	90
4.1. Modelo de densificación en UO_2	92
4.1.1. Descripción del modelo de densificación	92
4.1.2. Aspectos de la implementación en el código DIONISIO	98
4.1.3. Evaluación del modelo de densificación	100

4.2. Modelo de hinchamiento en UO_2	116
4.2.1. Hinchamiento por productos sólidos de fisión	117
4.2.2. Hinchamiento intragranular	119
4.2.3. Hinchamiento intergranular	129
4.3. Actualización de la porosidad del combustible	140
Referencias	141
5. Resultados integrales de barras combustibles	146
Referencias	161
6. Conclusiones	162
A. Estimación de la bondad de un ajuste	165
Referencias	167

Índice de figuras

1. Introducción	1
1.1. Diagrama de los componentes de una central nuclear de potencia [3]	1
1.2. Elemento combustible tipo CANDU [5].	4
1.3. Elemento combustible tipo PWR con detalle de una barra [12].	5
1.4. Elemento combustible tipo placa para un reactor de investigación [17]. . .	8
1.5. Discretización de una barra combustible de potencia en el código DIONISIO.	10
1.6. Algoritmo general del código DIONISIO	11
2. Modelos termohidráulicos	17
2.1. Curva de ebullición mostrando sus diferentes modos. Adaptada de Hu et al. [11]	19
2.2. Curvas cualitativas para CHF, flujo de calor local y DNBR a lo largo del núcleo. Adaptada de [10]	20
2.3. Ejemplo de elemento combustible tipo PWR (17x17) con detalle de un canal refrigerante simulado en DIONISIO. Adaptado de Pramuditya, S. [15]	21
2.4. Ejemplo de un arreglo (2x2) centrado en subcanales a) y centrado en las barras combustibles b).	23
2.5. Ejemplo de un elemento combustible (3x3) centrado en subcanales con la discretización utilizada en SubChanFlow [17].	24
2.6. Esquema de los dominios utilizados en DIONISIO y SubChanFlow junto a las variables principales a intercambiar entre los códigos	26
2.7. Distribución de potencia en los sectores y zonas axiales para la resolución termomecánica y termohidráulica.	28
2.8. Historia de potencia utilizada en la evaluación del acople y comparación de evolución de la temperatura central obtenida con SCF y con el acople. .	29
2.9. Comparación del perfil de temperatura del refrigerante entre DIO y DIO- SCF para diferentes potencias.	30
2.10. Comparación del perfil de la temperatura exterior de la vaina entre DIO y DIO-SCF para diferentes potencias.	31
2.11. Perfil final del espesor de óxido y la captura de hidrógeno a lo largo de la barra combustible obtenido por medio del cálculo numérico para la historia de potencia mostrada en la Figura 2.8	32
2.12. Temperatura exterior de la vaina a una potencia lineal del 300 [W/cm] para distintas longitudes.	32

2.13. Comparación de la temperatura exterior de vaina obtenida con DIO y DIO-SCF para TSQ004 [25]	34
2.14. Comparación del espesor del óxido a lo largo de la vaina entre las simulaciones y los datos experimentales de diferentes barras del programa US-PWR 16×16 LTA [25]	35
2.15. Comparación de la captura de hidrógeno a lo largo de la vaina entre las simulaciones y los datos experimentales de diferentes barras del programa US-PWR 16×16 LTA [25].	35
2.16. Crecimiento del óxido de la vaina calculado con DIO y DIO-SCF y su comparación con los con valores medidos en el experimento IFPE/OSIRIS R3 [27, 28]	36
2.17. a) Ejemplo de una malla de una placa en DIONISIO. El <i>meat</i> y el <i>cladding</i> se representan en mallas diferentes. Ejemplos de distribución de temperatura b) en una placa plana, c) en una placa curva y d) en un dominio de dos placas [14, 29]	38
2.18. Distribución de temperatura y espesor de óxido calculados con DIONISIO [14].	40
2.19. Esquema cualitativo de las zonas presentes en la capa próxima a una superficie plana en un régimen turbulento. Adaptada de COMSOL Blog [41]	45
2.20. Esquema cualitativo de la aplicación de funciones de pared y su efecto sobre el campo de velocidad. Adaptada de COMSOL Blog [41]	45
2.21. Diferencia de presión en el dominio del recipiente con agua en reposo . . .	49
2.22. Mallado utilizado para el problema de <i>Driven Cavity Flow</i>	50
2.23. a) Velocidad vertical con respecto a las abscisas para $y = 0.5$ [m] y b) Velocidad horizontal con respecto a las ordenadas para $x = 0.5$ [m] en conjunto los valores obtenidos por [46].	50
2.24. Magnitud del vector velocidad para diferentes valores de Re en el problema de <i>Driven Cavity Flow</i>	51
2.25. Magnitud del vector velocidad para diferentes valores de Re en el problema de <i>Driven Cavity Flow</i>	52
2.26. Perfil de la componente vertical de la velocidad a lo largo del canal en a) y a lo largo del espesor en b) para un caso laminar y turbulento. Se superponen los resultados obtenidos con el software comercial COMSOL. . .	53
3. Modelos para vainas combustibles	58
3.1. Arreglo de átomos para una estructura HCP como en el caso de α -Zr [4] .	59
3.2. Simulación de la deformación axial para muestras de Zircaloy-2 irradiadas en diferentes condiciones utilizando los modelos de DIONISIO y su comparación con los datos experimentales Rogerson [11, 12]	61

3.3. Simulación de la deformación axial (a, b) y radial (c, d) para el estudio paramétrico en Zircaloy-2 irradiado a diferentes condiciones de temperatura, tamaño de grano y deformación plástica utilizando el modelo presentado en este trabajo	69
3.4. Simulación del crecimiento axial en muestras de Zircaloy-2, previamente trabajadas en frío, irradiadas a diferentes condiciones y su comparación con datos experimentales [11].	71
3.5. Simulación del crecimiento por irradiación axial de una muestra de Zircaloy-2, previamente recocida, irradiada a 353 [K] [11].	72
3.6. Simulación del crecimiento axial en muestras de Zircaloy-2, previamente recocidas, irradiadas a diferentes condiciones y su comparación con datos experimentales [11].	73
3.7. Crecimiento por irradiación axial para muestras recocidas de Zr-1.5 % Sn calculado a 353 y 553 [K] y su comparación con datos experimentales [12, 36].	74
3.8. Crecimiento por irradiación axial y transversal para Zr-2.5 %Nb recocido e irradiado a 353 [K] y su comparación con medidas experimentales [12, 33].	75
3.9. Comparación entre los resultados experimentales para la deformación axial y las simulaciones realizadas con DIONISIO, ejecutando el modelo presentado en este trabajo. [42-45]. Las líneas punteadas indican $\pm 10\%$ del máximo valor medido.	78
3.10. Comparación entre la deformación axial calculada y medida para los experimentos TRIBULATION [44] y OVER-RAMP [45] utilizando DIONISIO con diferentes modelos de crecimiento por irradiación. Las líneas punteadas indican $\pm 10\%$ del máximo valor medido.	79
3.11. a) Simulación de la deformación axial de la vaina de la barra 2 del experimento IFA 562 en función del quemado y su comparación con los datos experimentales [42]. b) Evolución del radio interno de la vaina y del radio externo de la pastilla en función del quemado. El contacto comienza a unos 5 [MWd/kgU].	80
3.12. a) Crecimiento de zirconia y b) captura de hidrógeno para diferentes temperaturas y comparación con datos experimentales [52]	85
4. Modelos para pastillas combustibles	90
4.1. Esquema de la evolución de la porosidad con el quemado y los fenómenos intervinientes	90

4.2.	a) Efectos de la densificación y el hinchamiento en conjunto con la evolución de la temperatura central para un combustible Tipo 4 irradiado hasta un quemado de 3300 [MWd/tU] [8]. b) Simulación de la distribución de porosidad inicial y comparación con las distribuciones calculadas en un test de resinterizado y bajo irradiación.	102
4.3.	Distribución de porosidad para un combustible Tipo 4 irradiado hasta un quemado de 3300 [MWd/tU] [8].	103
4.4.	Comparación entre la densificación simulada y medida para diferentes microestructuras en los experimentos informados por Brite et al. [8].	104
4.5.	Comparación entre los datos experimentales de densificación de Brite et al. [8] y las simulaciones realizadas con DIONISIO; las líneas sólidas y de trazos corresponden a los modelos nuevo y previo, respectivamente.	105
4.6.	Comparación entre la densificación alcanzada en muestras irradiadas y los cálculos realizados con el modelo de Dollins [14] y el presentado en la sección 4.1.1.	106
4.7.	Comparación entre la porosidad final en muestras irradiadas y los cálculos realizados con el modelo de Dollins [14] y el presentado en la sección 4.1.1 para datos informados por Banks [5].	107
4.8.	Simulación de la evolución de la porosidad para muestras resinterizadas a 1973 [K] hasta 280 [h] en tratamientos isotérmicos y su comparación con datos experimentales [29].	109
4.9.	Distribución de porosidad inicial para el combustible M—A [29].	110
4.10.	Simulación de la evolución dimensional de un combustible IFA/A resinterizado a 1973 [K] durante 48 [h] y su comparación con datos experimentales [36].	112
4.11.	Comparación del hinchamiento por productos sólidos de fisión entre datos experimentales y los modelos de FRAPCON-4.0 [47], Olander [1] y Williamson [46].	119
4.12.	Comparación entre los radios de burbujas intragranulares simulados y los medidos experimentalmente para diferentes valores de η_b [60].	125
4.13.	Comparación entre los radios de burbujas intragranulares simulados y los medidos experimentalmente [60, 66]. Las líneas de trazo representan $\pm 50\%$ del mínimo valor medido.	127
4.14.	Comparación entre la concentración de burbujas intragranulares simulada y los datos experimentales [60, 66]. Los datos de Cornell [66] se presentan con (c/c) y sin corrección (s/c).	128
4.15.	Comparación entre el hinchamiento intragranular simulado y los datos experimentales [60, 66]. Los datos de Cornell [66] se presentan con (c/c) y sin corrección (s/c).	129

4.16.	Comparación entre el cálculo con el modelo intergranular y los datos experimentales [76] para: a) radio de curvatura de las burbujas intergranulares y b) concentración por unidad de área. En a) Las líneas ± 250 [nm] corresponde a la mayor desviación experimental observada, y en b) las líneas punteadas corresponden a desviaciones en un factor de 2 [52]	137
4.17.	Comparación entre el hinchamiento intergranular simulado y los datos experimentales [76].	139
5.	Resultados integrales de barras combustibles	146
5.1.	Historias de potencia para la serie de experimentos CONTACT.	148
5.2.	Evolución de a) la temperatura central de la pastilla y b) la liberación de gases de fisión en función del quemado para el caso CONTACT 1.	148
5.3.	Evolución de a) la variación del diámetro exterior de la vaina y b) el <i>gap</i> entre la pastilla y la vaina en función del quemado para el caso CONTACT 1.Las barras de error corresponden a ± 2 [μm]	149
5.4.	Comparación entre los códigos para el perfil de porosidad final de una pastilla del caso CONTACT 1.	150
5.5.	Evolución de a) la temperatura central de la pastilla y b) la liberación de gases de fisión en función del quemado para los casos CONTACT 2 y 2B.	151
5.6.	Evolución de a) la variación del diámetro exterior de la vaina y b) el <i>gap</i> entre la pastilla y la vaina en función del quemado para los casos CONTACT 2 y 2B.	151
5.7.	Potencia lineal promedio en función del tiempo y en b) evolución de temperatura central promedio de las barras TSQ002 y TSQ022 de los experimentos US-PWR 16x16 LTA.	153
5.8.	Perfil de la deformación relativa del diámetro exterior de la vaina a lo larga de la barra combustible para los casos TSQ002 y TSQ022.	154
5.9.	Perfil final del espesor de óxido (a) y de la captura de hidrógeno asociada (b) de las barras TSQ002 y TSQ022 de los experimentos US-PWR 16x16 LTA.	155
5.10.	Potencia lineal promedio en función del tiempo (a) y evolución de temperatura central para el sector más exigido de las barras G07 y H09 de los experimentos OSIRIS [9, 10]	158
5.11.	Evolución del <i>gap</i> (a) y de la variación de volumen de una pastilla del sector más exigido para las barras G07 y H09	158
5.12.	Perfil del espesor del óxido para las barras G07 y H09. Las barras de error corresponden a ± 4 [μm], tomando como referencia las medidas del experimento OSIRIS [9, 10]	160

5.13. Perfil de la variación relativa del diámetro exterior de las barras G07 y H09 de los experimentos OSIRIS [9, 10]. Se indican las variaciones con y sin capa de óxido.	160
A. Estimación de la bondad de un ajuste	165
A.1. Ejemplos en los que el test de normalidad de Shapiro-Wilk para los residuos, y el coeficiente de correlación de Pearson fallan	166

Índice de tablas

1. Introducción	1
1.1. Características generales de diferentes diseños de reactores nucleares [2]. . .	2
3. Modelos para vainas combustibles	58
3.1. Parámetros principales utilizados en el modelo	67
3.2. Propiedades mecánicas para aleaciones de zirconio	67
3.3. Parámetros microestructurales usados en el estudio paramétrico para Zircaloy– 2	68
3.4. Parámetros para Zircaloy–2 y condiciones de irradiación en las simulaciones	70
3.5. Coeficientes de correlación de concordancia entre los modelos de DIONISIO	78
3.6. Factores de captura de hidrógeno sugeridos por Allison et al. [7] y Hagrman y Reymann [50]	84
4. Modelos para pastillas combustibles	90
4.1. Posibles distribuciones consideradas en el modelo	98
4.2. Características de las distribuciones de porosidad precargadas en DIONISIO	99
4.3. Características principales de las distribuciones de porosidad informadas en Brite et al. [8]	101
4.4. Comparación entre los resultados experimentales de Small [33] y los cal- culados mediante el código DIONISIO	107
4.5. Características microestructurales de los combustibles utilizados por Maier et al. [29]	109
4.6. Características microestructurales de las pastillas combustibles utilizadas en los experimentos IFA [35, 36]	110
4.7. Características geométricas de las pastillas combustibles utilizadas en los experimentos IFA [35, 36]	111
4.8. Resultados de las simulaciones de los ensayos de resinterización de com- bustibles utilizados en los experimentos IFA [35, 36]	112
4.9. Relaciones y ecuaciones utilizadas en el nuevo modelo de densificación del código DIONISIO	114
5. Resultados integrales de barras combustibles	146
5.1. Dimensiones, parámetros de irradiación y principales características de la serie de experimentos CONTACT [1, 2]	147

5.2.	Dimensiones, parámetros de irradiación y principales características de la serie de experimentos US-PWR [7]	152
5.3.	Selección de los resultados obtenidos para los experimentos US-PWR [7] .	154
5.4.	Dimensiones, parámetros de irradiación y principales características de la serie de experimentos OSIRIS [9, 10]	156
5.5.	Parámetros de la distribución inicial de porosidad usados en las simulaciones	156
5.6.	Comparación de la distribución inicial de porosidad experimental y calculada para los experimentos OSIRIS	157
5.7.	Selección de los resultados obtenidos para los experimentos OSIRIS [9, 10]	159
A.	Estimación de la bondad de un ajuste	165
A.1.	Grado de concordancia según el valor del coeficientes de correlación de concordancia de Lin	166

1. Introducción

1.1. Reactores nucleares de fisión

Un reactor nuclear de fisión es un sistema capaz de producir energía a partir de reacciones nucleares de fisión que se producen de manera controlada. Esencialmente, un reactor nuclear consta de un núcleo activo, donde se ubican los elementos combustibles que contienen el material fisil, por lo general en forma de óxidos de uranio, un refrigerante que extrae el calor generado en el núcleo y un moderador para disminuir la velocidad de los neutrones, excepto en los reactores de neutrones rápidos. Además, dependiendo del tipo de reactor, el refrigerante y el moderador pueden estar combinados o no. En particular, un reactor de potencia, cuyo objetivo principal es la producción de energía eléctrica, cuenta con un circuito primario por donde circula el refrigerante a través del núcleo, manteniendo la temperatura y la presión dentro de los límites normales de operación. Por medio de un intercambiador de calor, la energía recolectada en el circuito primario produce vapor que es transportado, por el circuito secundario, hacia la turbina o conjunto de turbinas para realizar la conversión de energía mecánica en energía eléctrica [1, 2]. En la Figura 1.1 se puede observar un esquema general de los diferentes componentes en una planta nuclear de potencia PWR (Pressurized Water Reactor, por sus siglas en inglés: Reactor de agua presurizada).

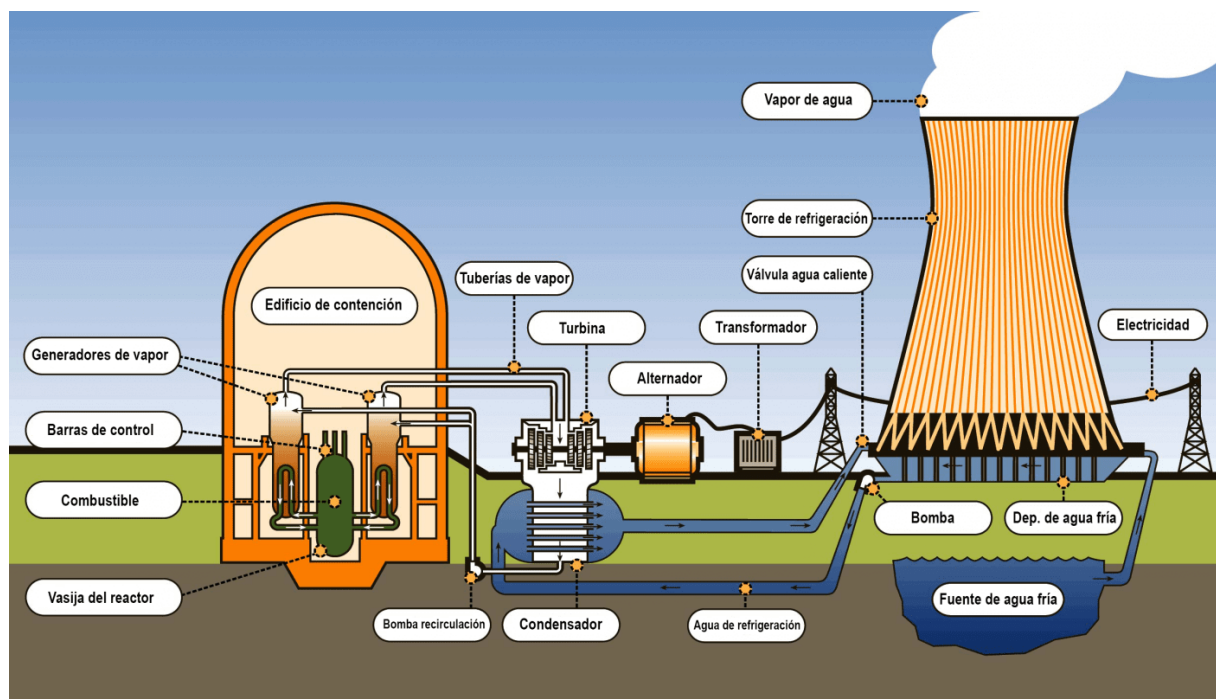


Figura 1.1: Diagrama de los componentes de una central nuclear de potencia [3]

La fisión de un átomo pesado, por ejemplo, uranio o plutonio, produce dos fragmen-

tos de fisión (*spikes*) liberando cierta cantidad de energía y dos o tres neutrones. A su vez, estos nuevos neutrones producen nuevas fisiones que permiten mantener la cadena de reacciones nucleares cuando el diseño es el adecuado. En la mayoría de los reactores comerciales se utiliza un moderador para disminuir la velocidad de los neutrones, en sucesivas colisiones elásticas. Esto se debe a que la energía promedio de un neutrón liberado a partir de la fisión es, aproximadamente, 200 [MeV] y a que la probabilidad de interacción entre los neutrones y los núcleos físi les aumenta si la energía de estas colisiones se ubica alrededor de los 0.025 [eV] [4]. Estos reactores se denominan “térmicos” ya que la energía neutrónica es equivalente a la energía por agitación térmica del medio. Para este fin se emplea frecuentemente agua liviana (H_2O) o pesada (D_2O), aunque también se utiliza grafito u otros compuestos, dependiendo del diseño del reactor. En cierto tipo de reactores, el refrigerante es también el moderador. El empleo de un moderador no es una condición necesaria ya que si se incrementa la concentración de material físil, los neutrones no requieren ser ralentizados para producir las reacciones nucleares. Los reactores sin moderador se denominan reactores “rápidos”. En este último tipo de reactores, el refrigerante puede ser sodio líquido, dióxido de carbono, helio, entre otros [5, 6].

Para mantener una adecuada economía de neutrones, un reactor nuclear se encuentra rodeado por un reflector cuya función es la de evitar la pérdida de los neutrones por escape. Para controlar la reacción nuclear se emplean barras de control, unas varillas conformadas por materiales absorbentes de neutrones que se introducen en el núcleo del reactor o se retiran de él para disminuir o aumentar su potencia de operación o eventualmente, para apagarlo [7].

Existen diferentes tipos de reactores nucleares dependiendo del tipo de refrigerante, moderador y combustible empleados. Una breve lista de los diseños más relevantes se encuentran en la Tabla 1.1.

Tabla 1.1: Características generales de diferentes diseños de reactores nucleares [2].

tipo de reactor	PWR	BWR	PHWR	UNGG	AGR	HTR	RBMK	FR
Energía neutrónica	térmica							rápida
Moderador	H_2O		D_2O	grafito				–
refrigerante ¹	H_2O pres.	H_2O ebull.	D_2O pres.	CO_2	CO_2	He	H_2O ebull.	Na
combustible enriq.	UO_2 (U,Pu) O_2 bajo	UO_2 (U,Pu) O_2 bajo	UO_2 natural	U metálico natural	UO_2 bajo	UO_2 UC_2 alto	UO_2 bajo	UO_2 UPuZr medio

Entre los principales diseños de reactores se pueden destacar los reactores de agua liviana (LWR –*Light Water Reactor*) en los que se utiliza agua tanto para el moderador como para el refrigerante. Estos son los PWR (y VVER por su nombre en ruso) y los

¹pres.: presurizada; ebull.: ebullición

reactores de agua en ebullición (BWR –Boiling Water Reactor). Los reactores de agua pesada (HWR –Heavy Water Reactor) utilizan D_2O como moderador, de los cuales el sistema más empleado es el que, además, emplea D_2O bajo presión como refrigerante (PHWR - Pressurized Heavy Water Reactor). Entre los reactores moderados con grafito se tienen los refrigerados por CO_2 (UNGG –Natural Uranium Gas-Graphite Reactor, AGR –Advanced Gas-Cooled Reactor), los refrigerados con He (HTR –High-Temperature Reactor) y por agua liviana en ebullición (RBMK, por sus siglas en ruso). Finalmente, se destacan los reactores de neutrones rápidos (FR –Fast Neutron Reactor) que se refrigeran con sodio [2].

Un diseño completamente diferente, aunque conceptualmente idéntico, se aplica a los llamados reactores experimentales o de investigación, en donde con núcleos mucho más pequeños y combustibles con mayor enriquecimiento, aumentan el flujo de neutrones considerablemente, aunque por su diseño el calor generado es mucho menor que el producido en un reactor de potencia. El calor es disipado por el refrigerante primario hacia el circuito secundario que involucra torres de enfriamiento. Estos reactores de baja potencia son utilizados como fuentes neutrónicas para la producción de radioisótopos, el estudio del comportamiento de materiales bajo irradiación y la investigación en física básica y constituyen piezas fundamentales del aparato productivo, médico o científico de todo país avanzado. Se diferencian de las centrales nucleoelectricas en su diseño y en su finalidad: están hechos para producir neutrones, no electricidad, por lo que el combustible se diseña, en general en forma de placas de pequeño espesor, para favorecer la extracción del calor generado por las reacciones nucleares [6, 8].

1.2. Barras y placas combustibles: requerimientos y diseños

A partir del diseño del núcleo del reactor, quedan definidos sus parámetros neutrónicos, termohidráulicos y geométricos. Estas características condicionan los materiales posibles a utilizar en los diferentes componentes del reactor, y en la etapa previa a su construcción es necesario realizar los cálculos apropiados para determinar la resistencia de los materiales y evaluar por medio de experimentos su comportamiento mecánico frente a las condiciones de operación [1, 7, 9, 10].

Dentro del núcleo de un reactor de potencia se distribuyen los llamados elementos combustibles: una estructura metálica que contiene una cierta cantidad de barras ensambladas adecuadamente y en cuyo interior se encuentra el material combustible propiamente dicho, por lo general, UO_2 , que se fabrica en forma de pastillas. En cada barra combustible, la pila de pastillas está recubierta por una vaina metálica (comúnmente de aleaciones de zirconio) con fines estructurales y de barrera con el refrigerante. Además, las barras contienen dos tapones, uno superior y otro inferior, un resorte en su interior cuya finalidad es mantener estabilizada la pila de pastillas y absorber sus cambios dimensionales durante la operación. A su vez, la barra cuenta con un espacio libre, denominado *plenum*, destinado a alojar los gases producidos durante las fisiones que se mezclarán con el gas de llenado que se introduce durante la fabricación [7, 11]. El diseño de los elementos combustibles, que incluye el número de barras, dimensiones y disposición espacial, depende esencialmente de las consideraciones térmicas, hidráulicas y neutrónicas de cada tipo de reactor. En las siguientes figuras se pueden observar ejemplos de elementos combustibles para reactores de potencia tipo PHWR (CANDU - *CANadian Deuterium Uranium* - Figura 1.2) y PWR (Figura 1.3).

Debido a la irradiación neutrónica, en las barras combustibles se produce una enorme

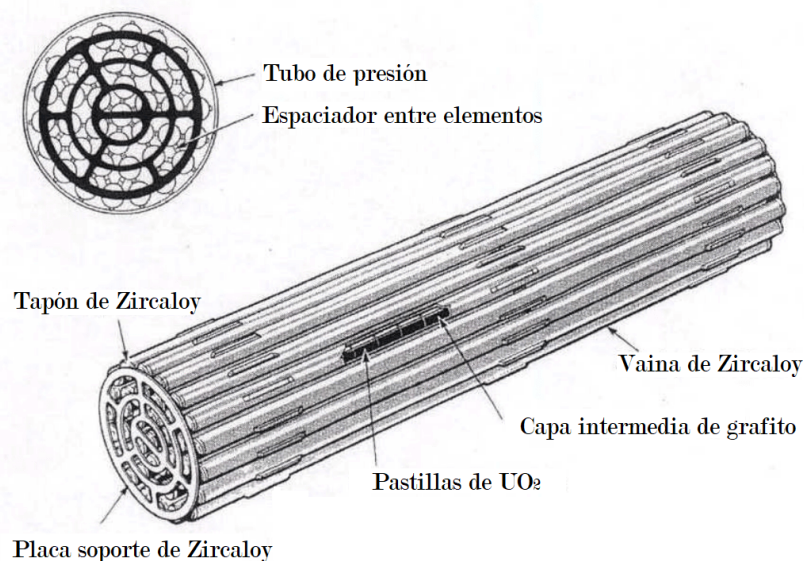


Figura 1.2: Elemento combustible tipo CANDU [5].

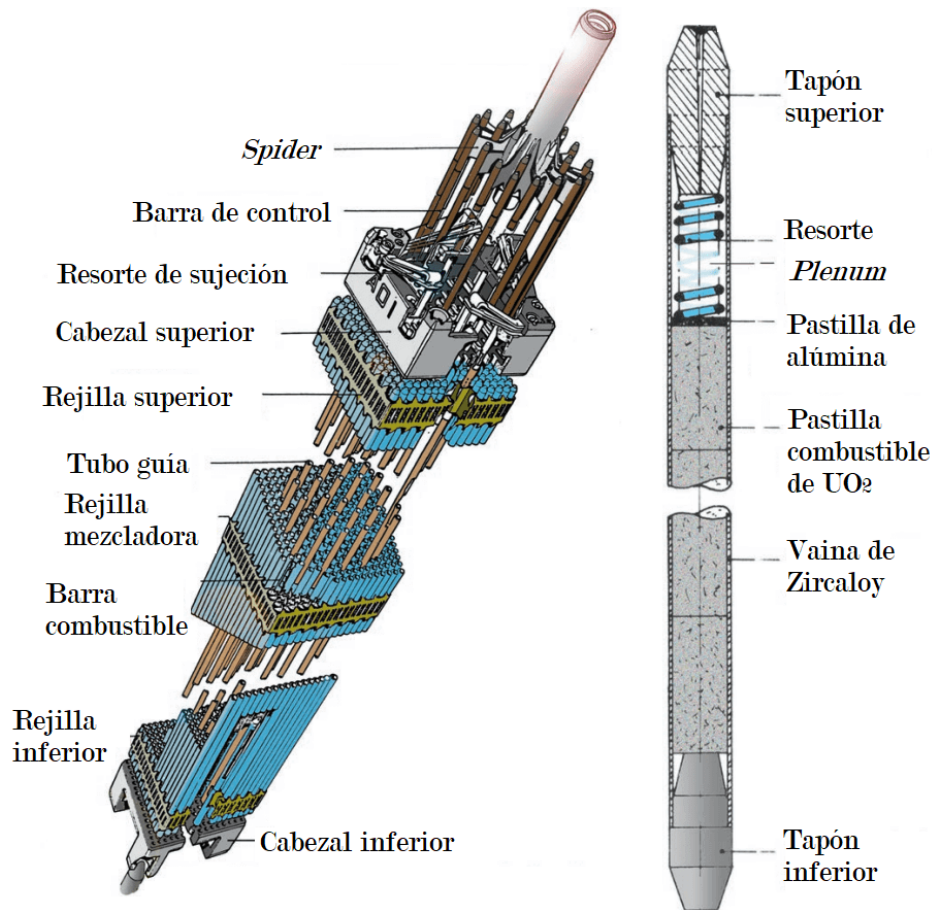


Figura 1.3: Elemento combustible tipo PWR con detalle de una barra [12].

variedad de fenómenos que modifican termomecánica- y termoquímicamente la estructura de sus componentes, algunos de los cuales pueden provocar daños estructurales, llegando a comprometer la integridad del dispositivo. En este sentido, los principales requerimientos para el material físil son: poseer una buena estabilidad geométrica en condiciones de operación; presentar suficientes propiedades térmicas para evitar la fusión de la columna de pastillas, lo que puede progresar y resultar en la fusión del núcleo del reactor (*Core meltdown*); tener aceptable compatibilidad química con el material de la vaina en caso de contacto que evite alteraciones en sus propiedades; buena estabilidad química con el refrigerante que garantice que en caso de que ocurra un daño en la vaina, el combustible pueda dejarse en el reactor o se tenga el tiempo suficiente para apagar el reactor y descargar las barras afectadas; y garantizar cierta densidad de átomos físis para una correcta economía del reactor. Por su lado, el material de la vaina debe asegurar las correctas propiedades mecánicas bajo las condiciones impuestas durante la operación, debido a la presión externa ejercida por el refrigerante y la interna por los gases de fisión que se liberan; debe tener buena resistencia a los fenómenos que se puedan desarrollar en la misma por irradiación; y presentar una compatibilidad química satisfactoria con el refrigerante que garantice la correcta extracción del calor. Características similares se requieren para los elementos estructurales del núcleo, con la diferencia que la vaina puede tener contacto

directo con el material físil durante condiciones normales de operación. El refrigerante establece una serie de requisitos adicionales a tener en cuenta desde el punto de vista termohidráulico (pérdidas de carga, arrastre, vibración), químico (corrosión, crecimiento de óxidos) e hidrostático (presión externa, ciclos de presión) que representan las condiciones de contorno bajo las cuales opera el combustible propiamente dicho [1, 9, 10].

A partir de los requisitos mencionados previamente, los materiales utilizados en los reactores nucleares son los que se indican en la Tabla 1.1. Debido a la relevancia nacional e internacional, en este trabajo se hace referencia principalmente al UO_2 como material de las pastillas, a las aleaciones de zirconio para las vainas, al agua como moderador y refrigerante y a los diseños PWR y PHWR. Si bien las elecciones de dichos materiales contemplan un buen balance entre las propiedades ideales requeridas y las exhibidas, entender su comportamiento y los procesos que tienen lugar en los mismos es fundamental para la operación de los reactores tanto en condiciones normales como en caso de incidentes y accidentes, y además para evaluar nuevos materiales a utilizar en reactores futuros.

Desde el punto de vista del material físil bajo irradiación, la densidad de fisiones dentro del mismo produce una gran cantidad de energía que se traduce finalmente en calor. Debido a la baja conductividad térmica que poseen los óxidos por naturaleza, este calor origina un fuerte gradiente de temperatura entre el centro y la superficie de la pastilla combustible. Además, las fisiones del ^{235}U que tienen lugar durante la irradiación generan una gran variedad de productos sólidos y gaseosos, que permanecen encerrados en la barra combustible y dan lugar a diversos fenómenos, muchos de ellos no deseados, que modifican la respuesta termomecánica de los materiales. Los productos de fisión que son retenidos por la matriz del combustible causan el fenómeno de hinchamiento (*swelling*) debido a que ocupan un volumen mayor que el U en UO_2 [13], aumentando así las dimensiones de la pastilla. Por otro lado, la porosidad inicial del combustible, retenida en su proceso de manufactura, tiende a disminuir por acción en conjunto de la temperatura y la irradiación [14]. A su vez, la termofluencia o *creep* que sufre la vaina, por la elevada presión exterior, y el crecimiento inducido por irradiación en conjunto con las variaciones dimensionales de la pastilla, tienden a disminuir el espacio o la distancia (*gap*) entre pastilla y vaina, que puede ocasionar el contacto mecánico entre dichos elementos (PCMI - *Pellet-Cladding Mechanical Interaction* en inglés), favoreciendo la evacuación del calor que se genera en la pastilla. Si bien este efecto contrarresta al deterioro de la conductividad, puede dar origen a situaciones de incidentes o accidentes ya que las fuertes tensiones en los puntos de contacto pueden provocar la propagación de fisuras, con el riesgo potencial de rotura de la vaina, particularmente durante transitorios de potencia y en presencia de una atmósfera corrosiva [15].

Estos fenómenos tienen lugar en condiciones normales de operación, pero sus efectos resultan más acuciantes cuando los materiales se encuentran exigidos por el cambio brusco de la potencia del reactor y más aún cuando las condiciones pasan al rango de accidente

y la tasa de remoción del calor no alcanza a balancear la de generación [16]. Para evitar estas condiciones se establecen ciertas normas que garantizan la operación segura de un reactor [1, 2, 7], como por ejemplo:

- La temperatura en el centro de la pastilla debe ser menor que la temperatura de fusión del UO_2 (aproximadamente 3120 [K] para material sin irradiar).
- Las condiciones de operación deben ser tales que el refrigerante no debe alcanzar la ebullición anular invertida o la formación de un film de vapor sobre la vaina, ya que esto reduce significativamente la capacidad de extracción del calor.
- La temperatura de la vaina en operación normal del reactor debe mantenerse en el rango de 523 a 673 [K]. Existen criterios que establecen una temperatura máxima de 623 [K] sobre la superficie exterior de la vaina, de modo tal de limitar los efectos de la corrosión: crecimiento de la capa de óxido externa y captura de hidrógeno.
- Desde el punto de vista mecánico, la deformación equivalente máxima de la vaina debe tener un máximo de 1 ó 1.5 %.
- En caso de ocurrir excursiones de alta temperatura, existen criterios de licenciamiento que establecen límites más allá de los cuales no se puede asegurar la integridad de la vaina. Actualmente se acepta que la máxima temperatura de la vaina nunca debe exceder los 1473 [K].

Un requerimiento adicional está dado por el modo de uso de los distintos tipos de combustibles en el reactor. En los reactores de uranio enriquecido, la recarga de combustible se realiza en paradas específicas, en general una vez al año o cada 18 meses, mientras que en los reactores de uranio natural o levemente enriquecido, se requiere una recarga frecuente debido a la menor cantidad de material fisiónable disponible en el combustible. Esto determina la diferencia entre las características estructurales del ensamble de las barras.

En cuanto al combustible utilizado en los reactores de investigación, son en su mayoría del tipo dispersos, es decir, partículas de un compuesto de uranio, con mayor enriquecimiento que en los reactores de potencia, dispersas en una matriz metálica (comúnmente una aleación de aluminio) para asegurar una buena extracción del calor de las partículas combustibles. Este material, denominado *meat* se colamina entre dos placas metálicas, también de una aleación de aluminio, para formar la **placa combustible**. El conjunto de placas junto a otros elementos estructurales forman el elemento combustible que se introduce en el reactor [8]. En la Figura 1.4 se puede observar un combustible placa del tipo disperso. Cabe mencionar la existencia de los combustibles monolíticos que consisten en un *meat* en forma de lámina de UMo y dentro de Zircaloy o acero. En este tipo de disposición, si bien se genera una mayor cantidad de fisiones por el aumento de la densidad de U, la temperatura también aumenta, lo que implica cambios en el diseño de la

ingeniería del reactor para poder contemplar condiciones de trabajo más exigentes que en el caso de usar combustibles dispersos.

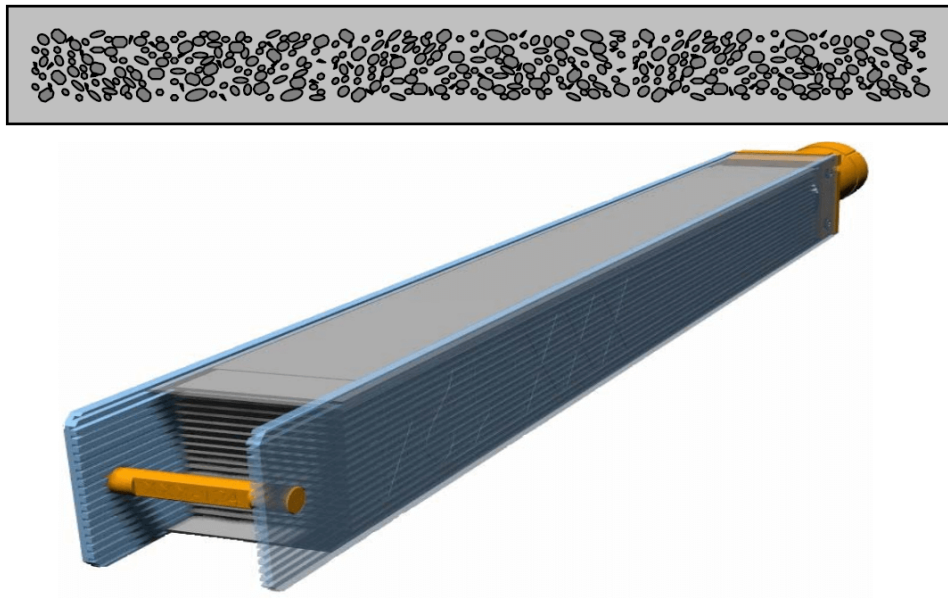


Figura 1.4: Elemento combustible tipo placa para un reactor de investigación [17].

1.3. Estudio del comportamiento del combustible nuclear

La eficiencia económica y poder garantizar centrales nucleares que operen de manera segura resultan imprescindibles, tanto para los operarios y trabajadores como para la población en general. Por ello, es importante poder conocer cómo es el comportamiento de un combustible y de los materiales involucrados dentro de un reactor nuclear. Aún más relevante es poder conocer su comportamiento en caso de accidentes y poder determinar cuáles serán las consecuencias de la evolución del accidente para poder tomar las decisiones que ayuden a mitigar su efecto. En este sentido, el estudio del comportamiento del combustible nuclear abarca una gran cantidad de disciplinas debido a la complejidad de los fenómenos involucrados. Además, los estudios sobre materiales nucleares que se realizan ayudan a evaluar nuevos materiales y tipos de combustibles que mejoren aún más los aspectos económicos y de seguridad.

Los estudios experimentales pueden realizarse dentro de un reactor (*in-reactor tests*), en donde se evalúan los efectos conjuntos de la temperatura y la irradiación, y fuera del reactor (*out-of-reactor tests*) bajo condiciones exclusivamente térmicas que intentan simular las condiciones de exigencias en un reactor. Estos estudios, si bien son necesarios, para poder llevarlos cabo se requiere de un gran esfuerzo en términos de tiempo, dinero y de la capacidad o no de medir con exactitud los diferentes parámetros involucrados, lo cual genera importantes desafíos en la industria nuclear. Es por ello que disponer de herramientas de cálculo que resulten confiables permite simular numéricamente determinados experimentos de manera segura y de forma más económica. Estas herramientas o códigos de cálculos proporcionan recursos para realizar ajustes y mejoras en los diseños de combustibles.

Validar un código requiere de una enorme cantidad de estudios para verificar su comportamiento al contrastarlo con datos experimentales. Esto implica la revisión y reformulación continua de los modelos involucrados para ampliar el rango de validez de los mismos y poder obtener resultados más realistas. La Sección Códigos y Modelos (SCM) de la Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear (GCCN) de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) ha desarrollado íntegramente un código de combustibles denominado DIONISIO. A continuación se detallarán sus principales características y capacidades.

El código DIONISIO

El código DIONISIO se compone de un conjunto de modelos destinados a simular el comportamiento de combustibles nucleares bajo irradiación dentro de un reactor de potencia o de investigación, tanto en condiciones de operación normal como de accidente. Aunando todas sus características, DIONISIO es un código multidimensional, ya que posee modelos uni-, bi- y tridimensionales acoplados entre sí.

Este código ha sido elegido para participar, como único representante de la Argentina, en proyectos internacionales destinados a la intercomparación y validación de códigos

de simulación de combustibles de potencia, patrocinados por el Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) (o en inglés: *International Atomic Energy Agency - IAEA*). Uno de ellos fue la tercera edición del proyecto *Fuel Modelling for Extended Burnup - (FUMEX III)* [18]. Recientemente, el código ha formado parte del proyecto internacional *Fuel Modelling in Accident Conditions - FUMAC* [19]. Además, la SCM 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), se han realizado cálculos predictivos del comportamiento de su combustible, contribuyendo al diseño del mismo. Asimismo, se han llevado a cabo trabajos similares en el marco del proyecto de reactor de investigación RA-10. Existen numerosas publicaciones y presentaciones a congresos en el contexto internacional, referidas al código y a los modelos en los que se basa, que avalan sus resultados [6, 15, 20-25].

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, el segmento de vaina y *gap* correspondientes a una barra combustible representativa de un determinado elemento. Para considerar la distribución de potencia a lo largo de una barra de combustible, se puede configurar DIONISIO para dividir la barra en un cierto número de sectores axiales, a los que se les asigna un valor de potencia lineal para representar dicha distribución en conjunto con las condiciones termohidráulicas necesarias. Este modo de simular, se encuentra prácticamente estandarizado en la gran mayoría de códigos de combustible y responde a una dimensionalidad $X_D + 1/2$, donde $X_D = 2; 3$ y la fracción $1/2$ representa la discretización longitudinal de la barra [15, 26] (Figura 1.5).

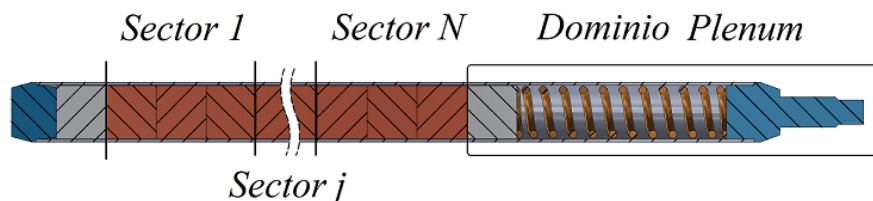


Figura 1.5: Discretización de una barra combustible de potencia en el código DIONISIO.

Por otra parte, la versión del código destinada a placas combustibles es completamente tridimensional, ya que resuelve la placa en su totalidad, aunque estima el comportamiento termohidráulico del refrigerante mediante aproximaciones en una dimensión.

El principal recurso numérico utilizado en DIONISIO para tratar el dominio pastilla-*gap*-vaina es el Método de Elementos Finitos (MEF o FEM - *Finite Element Method*). Entre los fenómenos modelados se encuentran la distribución de la temperatura, la expansión térmica, las deformaciones elásticas y plásticas, la fluencia, el crecimiento por irradiación, la interacción mecánica entre la pastilla y la vaina, la liberación de gases de fisión, la mezcla de gases, el hinchamiento y la densificación. Además, el código incluye un grupo de subrutinas dedicadas a calcular el comportamiento del combustible en condi-

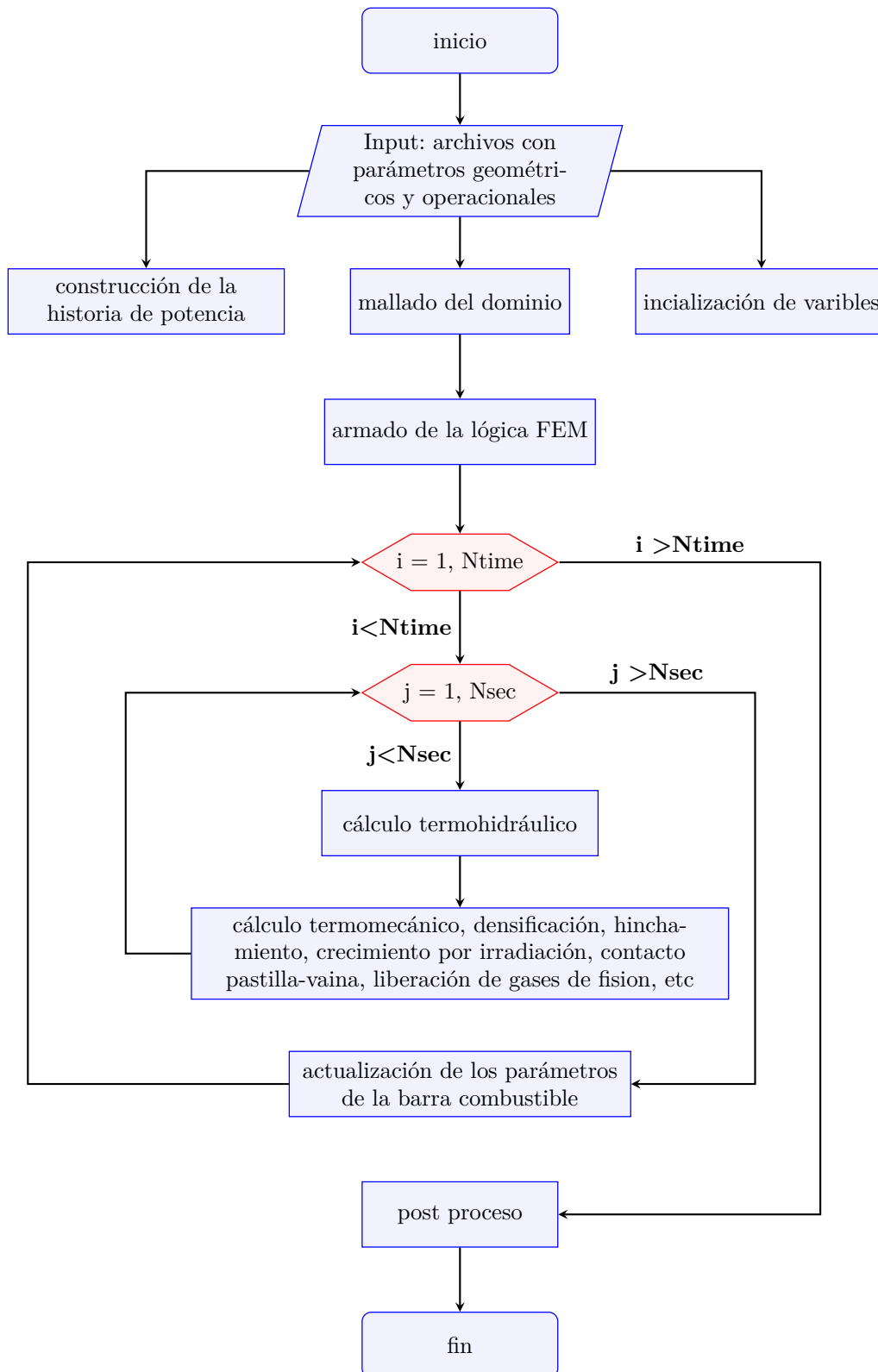


Figura 1.6: Algoritmo general del código DIONISIO

ciones de alto quemado². Además, el inventario de gases de fisión se calcula actualmente con un modelo de difusión, considerando granos de combustible esféricos y un esquema

²Se denomina **quemado** a la energía liberada por unidad de masa durante la vida del combustible. Se suele expresar considerando la masa total del combustible (UO_2) o la masa del metal pesado (U), en unidades de $[\text{MWd/kg}]$, $[\text{GWd/t}]$ o $[\text{MWd/t}]$.

de elementos finitos unidimensional. Los problemas de tensión-deformación y conducción del calor son no lineales debido a la plasticidad y a la dependencia de la conductividad térmica con la temperatura. Esto requiere un procedimiento iterativo para calcular las variables en cada nodo de la discretización.

En la Figura 1.6 se encuentra un esquema general del algoritmo utilizado en el código DIONISO para simular el comportamiento de combustibles nucleares. En donde **Ntime** es la cantidad total de pasos de tiempo y **Nsec** la cantidad de sectores en los que se divide longitudinalmente la barra.

La evolución del conjunto de fenómenos físico-químicos y su interacción mutua se simulan utilizando una historia de potencia lineal como dato de entrada. Para resolver la ecuación de difusión de calor en el dominio correspondiente, además de la entrada de potencia lineal, deben establecerse los valores de temperatura en la superficie externa de la vaina que proceden del modelo termohidráulico y debe especificarse un gradiente de temperatura igual a cero en la línea central de la pastilla de combustible. Siendo el objetivo de DIONISIO la simulación de los fenómenos que ocurren en el interior de una barra o placa combustible, el código aproxima la termohidráulica del canal que rodea a los combustibles mediante modelos simplificados unidimensionales. Sin embargo, los fenómenos que ocurren en dicho entorno tienen un efecto crucial en el desempeño del combustible pues su función es la de extraer el calor que se genera en su interior. El fluido refrigerante determina las condiciones térmicas de contorno de los procesos que ocurren en el combustible y, por lo tanto, necesita ser considerado para analizar el sistema [1, 9, 10, 27].

1.4. Objetivos y contenido de la tesis

De lo expuesto anteriormente, se desprende que describir el comportamiento integral de una barra o una placa combustibles, requiere no solo conocer cómo se ven afectados los materiales constitutivos de la misma frente a la irradiación neutrónica, sino también, analizar cómo interactúa esa barra/placa con el refrigerante y/o el moderador. Ambos dominios, el constituido por el combustible propiamente dicho y el que se encuentra fuera del mismo, son fundamentales para mantener su correcto funcionamiento y asegurar el rendimiento máximo del reactor al que pertenecen y alimentan. El poder predecir, cuantificar y analizar la evolución de los distintos parámetros que intervienen en este proceso justifican e impulsan el desarrollo continuo de programas que se abocan a la simulación de los complejos fenómenos involucrados en la vida de un elemento combustible.

Claramente si se pretende reproducir una barra o placa combustible integrando el problema del fluido circulante y sus distintas condiciones termoquímicas y termofísicas, que varían en el tiempo y que además son propias de cada reactor, el problema computacional involucrado se incrementa considerablemente, ya que exige resolver todo el combustible y el fluido del canal circundante. Una simulación completa de este problema requeriría plantear y resolver numéricamente, en un dominio tridimensional, las ecuaciones de Navier–Stokes destinadas a fluidos incompresibles y/o compresibles, en caso de que exista cambio de fase [28], en conjunto con los modelos necesarios para tratar este tipo de problemas [1, 27, 29, 30].

El enfoque utilizado en este trabajo sigue dos metodologías distintas, pero acordes a la filosofía con la que DIONISIO ha sido diseñado y construido desde su comienzo. Por un lado, en la versión destinada a barras combustible de reactores de potencia, se ha procedido a acoplar DIONISIO con un código termohidráulico nuclear validado internacionalmente, denominado SubChanFlow [31–34]. A través de una cooperación de trabajo entre la Universidad Nacional de General San Marín (UNSAM) y el Karlsruhe Institut für Technologie (KIT) en Alemania (SPUK - *Strategic Partnership UNSAM-KIT*), se integraron a DIONISIO las subrutinas que describen con detalle el comportamiento del canal refrigerante dentro de su estructura principal del código. Esto se acomoda a la filosofía de diseño de DIONISIO, puesto que una de sus bases es la de no poseer ningún código ni librería externos para su funcionamiento. Esto quiere decir que quien recibe DIONISIO, puede utilizar el código de manera autónoma sin requerir *softwares* externos, salvo las herramientas de visualización a elección del usuario. Por otro lado, para la versión de placas combustibles, se resolvió numéricamente las ecuaciones de Navier–Stokes destinadas a fluidos incompresibles, suponiendo que en las condiciones de trabajo de un reactor experimental, el fluido es turbulento y únicamente se encuentra en fase líquida [30, 35]. Esto amplía la biblioteca de elementos finitos y de modelos de DIONISIO.

En relación con el comportamiento del combustible bajo irradiación, se han desarro-

llado modelos tanto para la pastilla combustible como para la vaina. En el caso de las pastillas combustibles, se desarrollaron modelos de densificación y de hinchamiento para UO_2 . Así mismo, se desarrolló un módulo nuevo dentro de DIONISIO (denominado en su principio DIONISIO-FEM, pero actualmente se encuentra publicado como WIRR - *Without IRRadiation*) destinado a analizar dominios de pastillas o barras combustibles sometidos a cambios de temperatura y/o presión para simular experimentos sin irradiación. Además, se ha desarrollado un nuevo modelo de crecimiento inducido por irradiación para vainas de aleaciones de zirconio. Todos los modelos mencionados fueron incluidos y acoplados al resto de los existentes en DIONISIO y sus resultados comparados con los datos experimentales disponibles en la literatura.

Este trabajo de tesis se encuentra dividido en los capítulos mencionados a continuación. En el capítulo 2, se presentan la metodología de acople entre DIONISIO y SubChanFlow, el método de elementos finitos utilizado para resolver el problema del fluido refrigerante para combustibles placa y las evaluaciones de los mismos para diferentes condiciones. En el capítulo 3 se describen los principales modelos para analizar el comportamiento de vainas combustibles, en particular, se presenta el modelo de crecimiento bajo irradiación desarrollado para aleaciones de zirconio, así como diversas validaciones con datos experimentales. En el capítulo 4 se describen los modelos desarrollados para pastillas de UO_2 : densificación, hinchamiento en conjunto con la generación y liberación de gases de fisión. Además, se muestran ejemplos de aplicación del módulo WIRR y se provee de comparaciones con datos experimentales sin y bajo irradiación. En el capítulo 5, se muestran resultados seleccionados de simulaciones de barras combustibles integrales, teniendo en cuenta todos los efectos mencionados anteriormente. Finalmente, en el capítulo 6 se presentan las conclusiones y algunos trabajos que han quedado pendientes a ser completados en el futuro.

Referencias

- [1] L. S. Tong y J. Weisman. *Thermal Analysis of Pressurized Water Reactors*. American Nuclear Society, 1996.
- [2] H. Bailly, C. Prunier y Ménessier. *The Nuclear Fuel of Pressurized Water Reactors and Fast Neutron Reactors: Design and Behaviour*. Intercept Limited, 1999.
- [3] Foro Nuclear. *¿Cuáles son los distintos componentes de una central nuclear?* <https://www.foronuclear.org/actualidad/a-fondo/cuales-son-los-distintos-componentes-de-una-central-nuclear/>, Último acceso el 28-12-2022.
- [4] J. R. Lamarsch y A. J. Baratta. *Introduction to Nuclear Engineering*. Prentice Hall, 2001.
- [5] R. Chaplin. *The Essential CANDU. Introduction to Nuclear Reactor*. UNENE, Hamilton, 2014.
- [6] A. Soba y A. Denis. “PLACA/DPLACA: un código para la simulación del comportamiento de un combustible tipo PLACA monolítico/disperso”. *Revista Internacional de Métodos Numéricos para Cálculo y Diseño en Ingeniería* 23, 2 (2007).
- [7] S. Glasstone. *Ingeniería de Reactores Nucleares*. Reverté, 1975.
- [8] A. Soba. “Simulación del comportamiento termomecánico de una barra combustible en operación”. Tesis doct. Universidad de Buenos Aires, 2007.
- [9] N. E. Todreas y M. S. Kazimi. *Nuclear Systems I. Thermal Hydraulic Fundamentals and design*. Taylor & Francis, 1990.
- [10] N. E. Todreas y M. S. Kazimi. *Nuclear Systems II. Elements of Thermal Hydraulic Design*. Taylor & Francis, 2001.
- [11] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. Technical Information Center, Office of Public Affairs, Energy Research and Development Administration, 1976.
- [12] S. Marguet. *The Technology of Pressurized Water Reactors: from the Nautilus to the EPR*. Springer, 2022.
- [13] J. Spino, J. Rest, W. Goll y C. T. Walker. “Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO_2 fuels at high burn-up”. *Journal of Nuclear Materials* 346 (2005), págs. 97-107.
- [14] D. W. Brite, J. L. Daniel, N. C. Davis, M. D. Freshley, P. E. Hart y R. K. Marshall. *EEI/EPRI Fuel Densification Project. Report, EPRI-131*. Inf. téc. 1975.
- [15] E. Goldberg, M. 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: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.06.005>.
- [16] P. Moin. *NUREG*. ARN, 2010.
- [17] Departamento Corrosión - Comisión Nacional de Energía Atómica. *Oxidación de placas combustibles de aluminio de combustibles MTR en condiciones de transferencia térmica*. https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/48/050/48050308.pdf, Último acceso el 31-12-2022.
- [18] J. Killeen, E. Sartori y T. Tverberg. “FUMEX-III: A new IAEA Coordinated Research Project on Fuel Modelling at Extended Burnup”. *Top Fuel 2009*. Moscow: Nauska, 2009.
- [19] *Fuel Modelling in Accident Conditions (FUMAC)*. TECDOC Series 1889. Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2019. URL: <https://www.iaea.org/publications/13604/fuel-modelling-in-accident-conditions-fumac>.

- [20] 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* 374.1-2 (2008), págs. 32-43. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.06.020.
- [21] A. Soba, A. Denis, L. Romero, E. Villarino y F. Sardella. “A high burnup model developed for the DIONISIO code”. *Journal of Nuclear Materials* 433 (2013), págs. 160-166. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2012.08.016.
- [22] A. Soba, M. Lemes, M. E. González, A. Denis y L. Romero. “Simulation of the behavior of nuclear fuel under high burnup conditions”. *Annals of Nuclear Energy* 70 (2014), págs. 147-156. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.03.004.
- [23] 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. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2014.09.048.
- [24] 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.
- [25] E. Goldberg, M. E. Cazado, M. Loza Peralta y A. Soba. “New module for simulating experiments without irradiation included in the DIONISIO 3.0 code”. *Nuclear Engineering and Design* 374 (2021), pág. 111067. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2021.111067>.
- [26] R. Williamson, J. Hales, S. Novascone, M. Tonks, D. Gaston, C. Permann, D. Andrs y R. Martineau. “Multidimensional multiphysics simulation of nuclear fuel behavior”. *Journal of Nuclear Materials* 423 (2012), págs. 149-163.
- [27] L. S. Tong e Y. S. Tang. *Boiling Heat Transfer and Two-Phase Flow*. Taylor & Francis, 1997.
- [28] R. H. Pletcher, J. C. Tannehill y D. A. Anderson. *Computational Fluid Mechanics and Heat Transfer*. Taylor & Francis, 2013.
- [29] P. Moin. *Fundamentals of Engineering Numerical Analysis*. Cambridge University Press, 2010.
- [30] C. A. J. Fletcher. *Computational Techniques for Fluid Dynamics 2*. Springer Berlin, Heidelberg, 1991.
- [31] U. Imke y V. H. Sanchez. “Validation of the Subchannel Code SUBCHANFLOW Using the NUPEC PWR Tests PSBT”. *Science and Technology of Nuclear Installations* 2012 (2012), pág. 12. DOI: 10.1155/2012/465059.
- [32] W. Jaeger, J. Perez Manes, U. Imke, J. Jimenez Escalante y V. H. Sanchez. “Validation and comparison of two-phase flow modeling capabilities of CFD, sub channel and system codes by means of post-test calculations of BFBT transient tests”. *Nuclear Engineering and Design* 263 (2013), págs. 313-326. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2013.06.002.
- [33] J. C. Almichi, V. H. Sanchez y U. Imke. “Extension and validation of the SubChanFlow code for the thermo-hydraulic analysis of MTR cores with plate-type fuel assemblies”. *Nuclear Engineering and Design* 379 (2021), pág. 111221. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.02.028.
- [34] M. García et al. “Validation of Serpent-SUBCHANFLOW-TRANSURANUS pin-by-pin burnup calculations using experimental data from Pre-Konvoi PWR reactor”. *Nuclear Engineering and Design* 379 (2021), pág. 111173. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2021.111173.
- [35] O. Zienkiewicz y R. Taylor. *The Finite Element Methods. Volume 3: Fluids Dynamics*. Butterworth Heinemann, 2000.

2. Modelos termohidráulicos

La velocidad con la que se remueve el calor del núcleo de un reactor y las tensiones que se desarrollan en el núcleo y en las barras combustibles dependen fuertemente del comportamiento del fluido del sistema. Las descripciones presentadas en este capítulo se centran en los sistemas refrigerados por agua en un dominio compuesto entre una barra combustible y el fluido circundante, y se supone un reactor esencialmente intacto, por lo que no se abordarán en detalle los análisis en casos de accidente [1].

Una descripción detallada de la remoción de energía por el refrigerante no solo incluye el balance de energía, sino también el balance de masa y de momento en el sistema del fluido. Debido a las geometrías de los canales alrededor de las barras combustibles y las condiciones térmicas, los regímenes del flujo presentan gran complejidad, no solo por su condición turbulenta, sino por la existencia de fases de vapor aún en condiciones normales de operación.

Hasta el momento, el modelo termohidráulico del código DIONISIO solo contempla un fluido en fase líquida cuando trabaja en condiciones normales de operación. Aunque ha sido probado y validado con gran cantidad de experimentos [2-8], para aumentar la validez del mismo es necesario ampliar las condiciones de trabajo. Sin embargo, desarrollar todas las herramientas necesarias excederían los objetivos para lo cual un código de combustibles es concebido. Por ello, aquí se presenta el acople entre DIONISIO y el código termohidráulico SubChanFlow, que permite tener una nueva herramienta unificada, aprovechando con detalle los modelos de combustibles y de interacción fluido-estructura incluidos en ambos códigos.

Por otro lado, para el caso de reactores de investigación, los niveles térmicos en condiciones normales de operación garantizan un refrigerante en fase líquida. Para este caso, se presentan los avances del desarrollo de un modelo termohidráulico utilizando como herramienta el método de elementos finitos, ya incluido en DIONISIO, para extender el modelo unidimensional actualmente disponible.

2.1. Modelo termohidráulico para reactores de potencia

A pesar de que en los primeros diseños de reactores PWR se restringía la formación de pequeñas burbujas sobre la superficie de la vaina, el flujo en doble fase de manera controlada y sin formación neta de vapor en la salida del circuito es uno de los modos más eficientes de extracción del calor en las instalaciones actuales [1, 9, 10].

La transferencia en doble fase se puede clasificar en cuatro “modos de ebullición” dependiendo de la temperatura de la superficie (T_w) o temperatura de sobrecalentamiento de la superficie ($\Delta T_{sat} = T_w - T_{sat}$), en donde T_{sat} es la temperatura de saturación del fluido. Esta clasificación se toma convencionalmente a partir de experimentos de ebullición realizados en un recipiente [10]:

- **Natural Convection Boiling** o ebullición por convección natural. $\Delta T_{sat} < 5$ [K]. Para que una sustancia pura entre en ebullición, la termodinámica establece que $T_w = T_{sat}$. Sin embargo, en los experimentos se obtiene que para que la ebullición se sostenga, la temperatura sobre superficie debe ser algunos grados superior. En este modo, no se observan burbujas de manera efectiva, pero sí vapor sobre la superficie del fluido.
- **Nucleate Boiling** o ebullición nucleada. 5 [K] $< \Delta T_{sat} < 30$ [K]. Cuando la temperatura de la superficie sigue en aumento, comienza la nucleación de pequeñas burbujas en la misma. Este es uno de los modos de ebullición local más importante en los reactores. Las burbujas se desprenden y son arrastradas hacia el flujo principal. Una vez allí, las burbujas condensan y colapsan dado que la temperatura en el centro del fluido es inferior a la temperatura de la superficie. Este proceso mejora la transferencia, ya que el calor generado en la superficie se transporta directamente al seno del líquido. Se debe recordar, que en la transferencia por simple fase, aun en flujo turbulento, existe una subcapa laminar que presenta una menor capacidad para el intercambio del calor. Cuando además, la temperatura global del refrigerante es menor que T_{sat} se le conoce como ebullición nucleada subenfriada o *subcooled nucleate boiling*.
- **Transition Boiling** o ebullición de transición. 30 [K] $< \Delta T_{sat} < 200$ [K]. El flujo de calor no puede aumentarse indiscriminadamente y mantener el modo anterior. Existe un valor crítico de flujo de calor (CHF - *critical heat flux*) para el cual las burbujas de vapor formadas tienen un gran tamaño y ocupan casi toda la superficie. Esto deteriora la transferencia térmica, aumentando la temperatura de la superficie significativamente hasta alcanzar, inevitablemente, el modo de ebullición en film.
- **Film Boiling** o ebullición en film. $\Delta T_{sat} > 200$ [K]. Este modo se produce cuando el flujo de calor es tal que se forma una capa de vapor que recubre completamente la superficie. Debido a la baja conductividad térmica del vapor en comparación con el

fluido, la temperatura de la superficie aumenta significativamente, pudiendo provocar la falla del material. La transición entre *nucleate boiling* hacia *film boiling* se conoce como crisis de ebullición (*boiling crisis*).

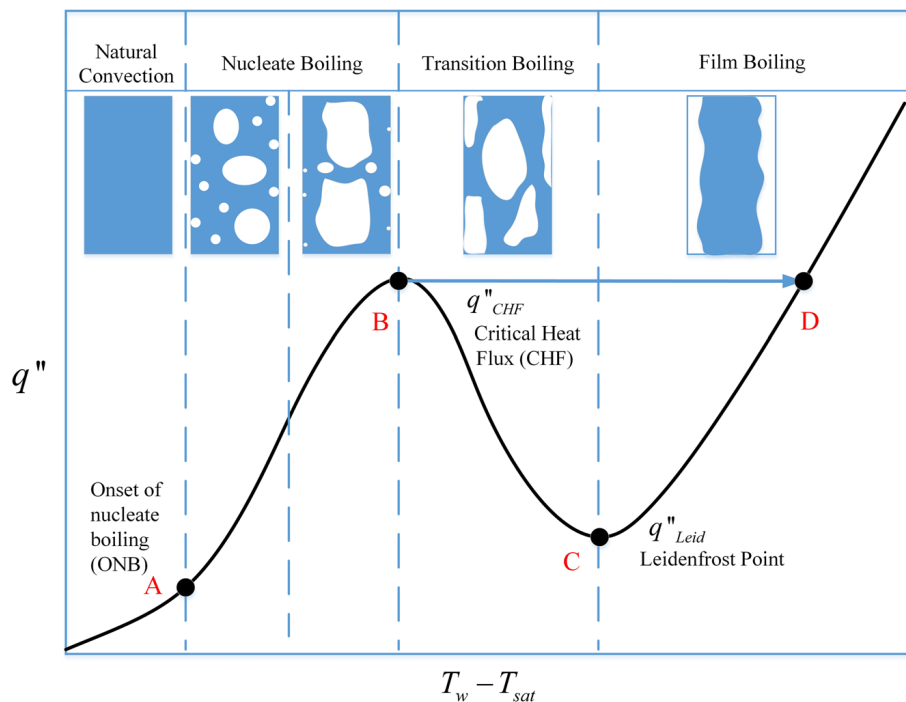


Figura 2.1: Curva de ebullición mostrando sus diferentes modos. Adaptada de Hu et al. [11]

En la Figura 2.1 se muestran los diferentes modos de ebullición de forma cualitativa dependiendo de ΔT_{sat} .

En el caso de los PWR, el problema crítico de seguridad se denomina DNB (*Departure from Nucleate Boiling* - desviación de la ebullición nucleada). Esto provoca la formación de una capa de vapor alrededor de la vaina combustible, ocasionando una pérdida abrupta de la capacidad de transferencia térmica. Debido a esto y a que el flujo de calor se mantiene, el calor se acumula en la barra de combustible, lo que conlleva a un aumento importante de la temperatura de la vaina y del combustible en sí, poniendo en peligro la integridad física del sistema. El fenómeno de DNB ocurre cuando el flujo de calor local alcanza el valor del flujo crítico de calor. Debido a la importancia del CHF, en la industria nuclear se han realizado numerosos estudios numéricos y experimentales para evaluar de manera precisa este parámetro. Sin embargo, debido a la compleja naturaleza del fenómeno de transferencia térmica en doble fase, los mecanismos presentes durante la crisis de ebullición aún no se comprenden completamente, por lo que la determinación del CHF sigue creando desafíos. Existen diferentes correlaciones para el CHF que dependen de la geometría del reactor, de la entalpía del refrigerante (a la temperatura inicial y de saturación), de la presión del sistema, del flujo másico del refrigerante y de la calidad de vapor (relación entre el flujo de vapor y el flujo total en un sistema de doble fase) [12].

La mayor limitación en el diseño térmico de un reactor refrigerado por agua es la necesidad de mantener un margen de seguridad adecuado entre las condiciones de operación y el CHF. Para poder tener un criterio técnico y práctico de seguridad, se define la relación DNBR (*Departure from Nucleate Boiling Ratio*) [1, 13]:

$$DNBR = \frac{q_{cr}(z)}{q_{local}(z)} \quad (2.1)$$

en donde, q_{cr} es el flujo crítico del calor obtenido por alguna correlación adecuada y q_{local} el flujo local de calor, ambos tomados en una determinada altura de la barra combustible.

Los reactores se deben diseñar de modo tal que el DNBR a lo largo de la altura del núcleo sea mayor que un cierto valor mínimo ($DNBR_{lim}$). Idealmente, es decir, si las correlaciones para el cálculo de CHF no tuvieran incertidumbres, $DNBR_{lim} = 1.0$. Sin embargo, debido a que ninguna correlación es perfecta se acepta un valor $DNBR_{lim} = 1.30$.

Como puede observarse en la Figura 2.2, el DNBR varía a lo largo del canal debido a la variación del flujo de calor. Suponiendo una distribución de potencia lineal con forma cosenoidal, el valor mínimo de DNBR no ocurre en el centro del núcleo sino en la zona superior.

Como se mencionó previamente, desarrollar todos los modelos que contemplen la gran variedad de modos de transferencia térmica dentro del código DIONISIO se desviaría de su objetivo principal como código de comportamiento de combustibles. Es por ello, que se plantea la unión con una herramienta que ya contenga todas las correlaciones necesarias y así DIONISIO servirse de ellas para sus condiciones de contorno. A continuación se presenta una descripción de los modelos termohidráulicos incluidos en DIONISIO y SubChanFlow.

2.1.1. Descripción de los códigos

DIONISIO

Para realizar una simulación del comportamiento de los combustibles es necesario establecer los valores de temperatura en la superficie exterior de la vaina. Esto proviene del modelo termohidráulico incluido en el código DIONISIO.

En el modelo termohidráulico utilizado, se supone un canal con una geometría anular alrededor de la barra combustible que posee un área equivalente al área del canal en

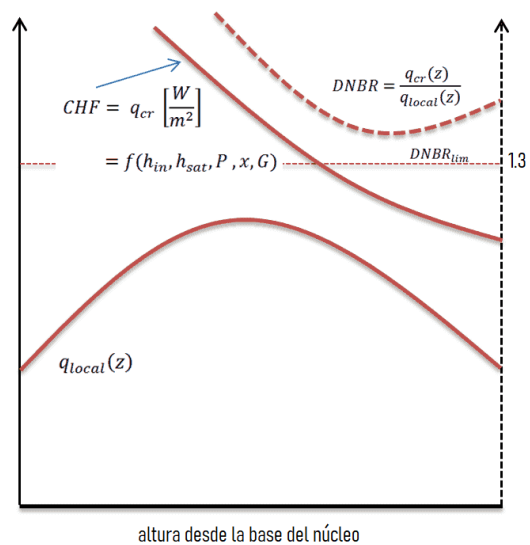


Figura 2.2: Curvas cualitativas para CHF, flujo de calor local y DNBR a lo largo del núcleo. Adaptada de [10]

un elemento combustible real (ver ejemplo en Figura 2.3). Además, el refrigerante se transporta en fase simple, es decir que no se considera el régimen *nucleate boiling* u otro modo de transferencia térmica.

La temperatura del refrigerante a una altura determinada de la base de la barra se puede obtener a partir de un balance de energía, de modo tal que se tiene [14]:

$$T_R(z) = T_0 + \frac{1}{Q_m C_p} \int_{-\frac{L}{2}}^z P_l(z) dz \quad (2.2)$$

en donde T_0 es la temperatura de entrada del refrigerante, Q_m [kg/s] es el caudal másico, C_p [J/(kgK)] es la capacidad calorífica específica del fluido, L [m] es la longitud activa de la barra y P_l [W/m] es la potencia lineal.

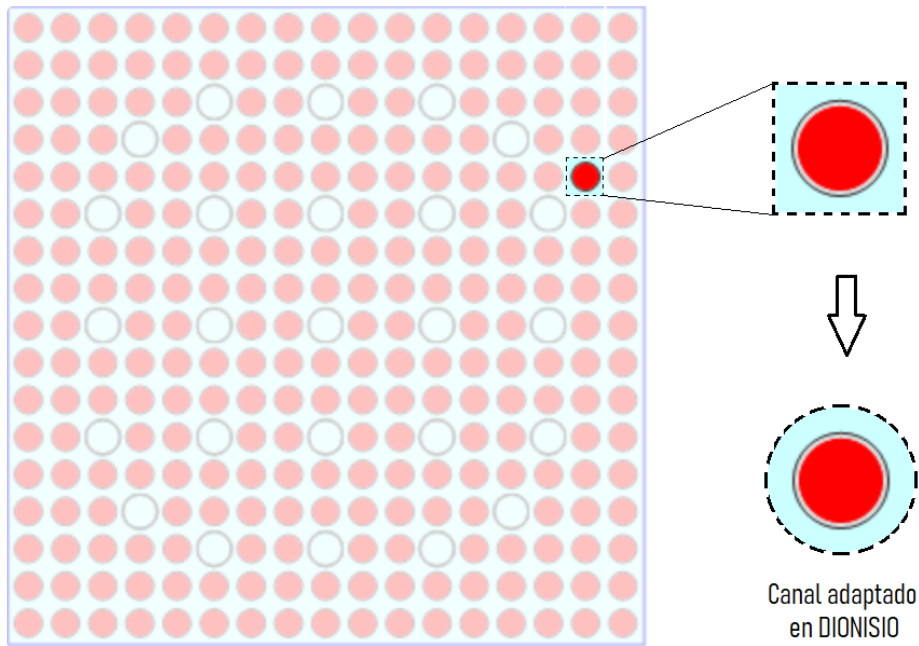


Figura 2.3: Ejemplo de elemento combustible tipo PWR (17x17) con detalle de un canal refrigerante simulado en DIONISIO. Adaptado de Pramuditya, S. [15]

La temperatura de la superficie exterior de la vaina (T_V) se obtiene como la temperatura del refrigerante (T_R) más el salto térmico sobre la superficie [14]:

$$T_V(z) = T_R(z) + \frac{P_l(z)}{\pi d_V h_{eff}} \quad (2.3)$$

en el que d_V [m] es el diámetro exterior de la vaina y h_{eff} [W/(m²K)] es el coeficiente de transferencia de calor por convección entre la superficie metálica de la vaina y el refrigerante [1].

Durante condiciones normales de operación, el fluido presenta un comportamiento turbulento. A pesar del gran avance en el entendimiento de este fenómeno, las limitaciones debido a su complejidad hacen necesario el uso de correlaciones empíricas. Para un fluido

turbulento por un canal alrededor de una barra puede emplearse [1]:

$$h_{eff} = \frac{Nu \cdot k_w}{De} \quad (2.4)$$

en donde Nu es el número de Nusselt, k_w [W/mK] es la conductividad térmica del fluido y De [m] es el diámetro equivalente (diámetro hidráulico) que se obtiene como una relación entre el área del canal (A_{ch}) y el perímetro de la barra combustible ($perim_b$):

$$De = \frac{4A_{ch}}{perim_b} \quad (2.5)$$

La correlación de Dittus-Boelter para flujo turbulento es una de las más empleadas para el Nu [1]:

$$Nu = 0.023Re^{0.8}Pr^{0.4} = 0.023 \left(\frac{vDe}{\nu} \right)^{0.8} \left(\frac{\mu}{C_p k_w} \right)^{0.4} \quad (2.6)$$

en donde, Re es el número de Reynolds, Pr es el número de Prandtl, v [m/s] es la velocidad del fluido, que es un dato de entrada para el código DIONISIO, μ [$Pa \cdot s$] es la viscosidad dinámica, $\nu = \mu/\rho$ [m^2/s] es la viscosidad cinemática y ρ [kg/m^3] es la densidad del agua.

En condiciones normales de funcionamiento, se puede constatar el crecimiento de una capa de óxido de zirconio (ZrO_2) en la vaina, sobre todo en la parte exterior. Este óxido actúa como aislante entre el metal y el refrigerante, ya que tiene una escasa conductividad térmica y, en consecuencia, reduce la transferencia de calor y aumenta la temperatura del sistema. El aumento de temperatura asociado al óxido está dado por [14]:

$$\Delta T_{ox} = \frac{P_l(z)e_{ox}}{\pi d_V k_{ok}} \quad (2.7)$$

donde e_{ox} [m] y k_{ok} [W/mK] son el espesor y la conductividad térmica del óxido, respectivamente.

Las propiedades del agua y de la vaina requeridas en las Ec. (2.2-2.7) pueden encontrarse en [16].

A pesar de que este modelo simplificado presenta un buen comportamiento en las pruebas y validaciones realizadas con DIONISIO [2-8] al comparar con datos experimentales, existe la necesidad de aumentar el rango de validez del mismo, especialmente para contemplar el efecto de ebullición nucleada y así obtener simulaciones aún más realistas. Para ello, se propone un acoplamiento con el código termo hidráulico SubChanFlow.

SubChanFlow

SubChanFlow es un código de termohidráulico desarrollado por el Instituto de Tecnología de Karlsruhe (KIT) basado en los programas de subcanal COBRA-IV-I y COBRA-EN. El código permite evaluar barras combustibles, elementos combustibles con arreglos rectangulares o hexagonales y núcleos con distintas geometrías con una descripción de-

tallada de los procesos que tienen lugar en el dominio del refrigerante y la interacción refrigerante-estructura durante la irradiación. SubChanFlow no describe el flujo simulando los fenómenos a micro-escala, sino aprovechando muchas correlaciones empíricas importantes relacionadas con la transferencia de calor, la pérdida de presión y la formación de *voids* (burbujas de vapor), entre otros. Las propiedades del refrigerante y las funciones de estado utilizadas en el código se implementan para el agua utilizando la base de datos IAPWS-97 (The International Association for the Properties of Water and Steam). También contiene una biblioteca con funciones de propiedades para metales líquidos, como sodio y plomo.

La geometría de un núcleo en SubChanFlow puede centrarse en los subcanales o en las barras combustibles, como se muestra en un pequeño ejemplo en la Figura 2.4. En el primer caso, el área de los subcanales varía dependiendo de la posición, mientras que en el segundo caso todos tienen la misma área, aunque es también posible introducir áreas distintas en este tipo de arreglo. Además, la altura de los subcanales se divide en varias zonas axiales en función de los requisitos del usuario.

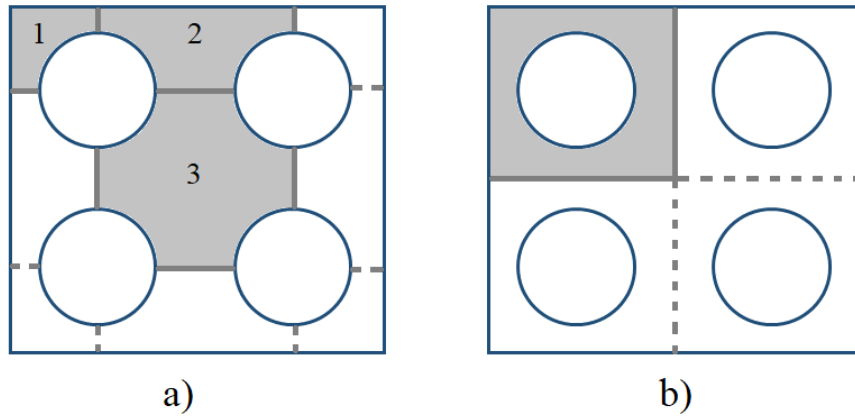


Figura 2.4: Ejemplo de un arreglo (2x2) centrado en subcanales a) y centrado en las barras combustibles b).

En la Figura 2.5 se presenta un ejemplo simplificado de un elemento combustible con nueve barras. Además, se indican los parámetros claves del enfoque de subcanal: zona axial (j) en el canal (i) junto a los canales circundantes (n) y el denominado *gap* (k)¹. A su vez, se indican las principales variables: $m_{i,j}$ [kg/s] es el caudal másico en dirección axial, $P_{i,j}$ [Pa] es la presión en el contorno de la zona axial, $h_{i,j}$ [J/kg] es la entalpía específica de la mezcla, $\rho_{i,j}$ [kg/m³] es la densidad de la mezcla, $T_{i,j}$ [K] es la temperatura, $\alpha_{i,j}$ es la fracción de *voids*, $q_{r,j}$ [W/m²] es el flujo de calor entregado por la barra r hacia la zona axial j y $w_{k,j}$ [kg/ms] es el caudal másico lineal a través del *gap* entre los subcanales.

El detalle de las ecuaciones básicas de balance y las ecuaciones constitutivas pueden consultarse en múltiples referencias [17-20]. A continuación se señalan algunas de las

¹No se debe confundir la distancia *gap* designada con S y el subíndice k que designa un *gap* particular de los dos a cuatros *gaps* que tiene cada subcanal.

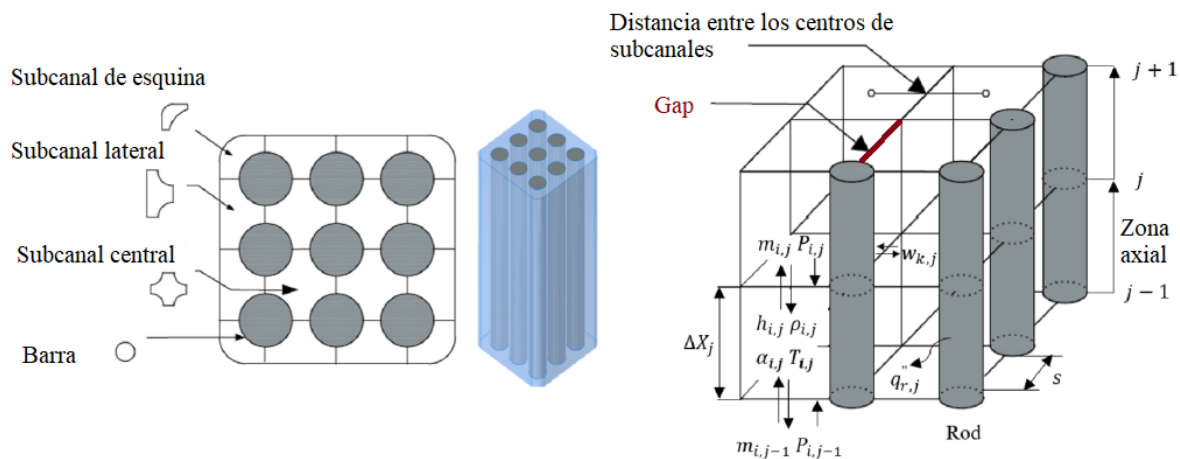


Figura 2.5: Ejemplo de un elemento combustible (3x3) centrado en subcanales con la discretización utilizada en SubChanFlow [17].

características más relevantes presentes en SubChanFlow:

- Para la simulación del fluido, se aplica un modelo de flujo bifásico de tres ecuaciones para el balance de masa, momento y energía en estado estacionario y transitorio. El sistema de ecuaciones se resuelve para cada subcanal, considerando la transferencia entre el refrigerante con sus correspondientes barras, incluyendo la fricción contra superficies sólidas.
- El fenómeno de fricción del fluido contra una superficie sólida produce una pérdida de presión (también denominada pérdida de carga) a medida que avanza su recorrido. El código cuenta con diferentes modelos para tratar este fenómeno. La correlación más utilizada es el modelo simple de Blasius. Por otro lado, la correlación de Churchill depende de la rugosidad de la superficie y este dato debe ser incorporado como dato de entrada en caso de utilizarse. Además, existen modelos que permiten considerar elementos estructurales pertenecientes al elemento combustible como rejillas y alambres. La correlación de fricción de Armand es la estándar cuando se evalúa un fluido en doble fase [1, 20].
- En la ecuación de energía, el flujo de calor emitido desde las superficies de las barras combustibles es el principal término fuente. Para los casos de transferencia térmica en fase simple, el código usa el modelo simple de Dittus-Boeter, también incorporado en DIONISIO, o el modelo más sofisticado de Gnielinski, usado en el código termo-hidráulico TRACE. Para los casos de doble fase, la correlación utilizada depende del mecanismo de transferencia presente en la curva de ebullición (Figura 2.1). En particular, bajo un mecanismo de ebullición nucleada subenfriada existen diversas correlaciones (Levy, Bowring y Saha-Zuber) que permiten determinar las zonas a lo largo de la barra en donde se cumplen las condiciones para actuar. De ellas, la correlación de Levy es una de las más exitosas [1].

- En los casos en que se simule un elemento combustible o un núcleo, el flujo cruzado entre subcanales está presente en la descripción de los modelos.
- El código contiene un modelo que permite calcular la distribución de temperatura de la barra combustible a partir de la entrada de potencia y la transferencia de energía entre la vaina y el refrigerante.

SubChanFlow ha sido validado utilizando numerosos experimentos de diferentes diseños y geometrías de núcleo [18, 19, 21-24]. Sin embargo, aunque el módulo de comportamiento de combustible incorporado tiene en cuenta la evolución del *gap* entre la pastilla y la vaina debido al hinchamiento, la relocación y la expansión térmica, no hay evolución de la porosidad debido a la densificación y al hinchamiento, manteniendo este valor constante a lo largo de toda la simulación. En este sentido, el modelo de conductividad térmica solo tiene en cuenta el efecto de la temperatura y la porosidad inicial y no considera el efecto del quemado del combustible o de venenos quemables². Por otro lado, tampoco cuenta con modelos que permitan simular el crecimiento por irradiación y *creep* para la vaina.

Por las razones expuestas anteriormente y para obtener simulaciones más realistas, se propuso el acople de los códigos para aprovechar las capacidades de los modelos termomecánicos incluidos en DIONISIO y la descripción detallada de los fenómenos termohidráulicos en SubChanFlow.

2.1.2. Metodología del acople entre los códigos DIONISIO y SubChanFlow

Debido a que DIONISIO evalúa solo una barra combustible, durante el acople, la geometría usada en SubChanFlow consiste en un único canal con la barra centrada. La unión de los códigos consiste en un acople interno en donde DIONISIO se utiliza como el código principal y controla a SubChanFlow como una subrutina termohidráulica.

El concepto general de este acople consiste en utilizar, en cada paso temporal, los datos termohidráulicos obtenidos con SubChanFlow como condiciones de contorno para resolver el problema termomecánico en DIONISIO, y esta solución servir como condición de contorno para SubChanFlow en el siguiente paso temporal y repetir el proceso. Esto quiere decir que no hay iteración entre los códigos en cada paso temporal, evitando así un consumo computacional excesivo. En concreto, SubChanFlow se ejecuta en cada paso de tiempo en estado estacionario utilizando una potencia de acuerdo con la historia de potencia incorporada en la entrada de DIONISIO (esquema pseudo-transitorio) y calcula la distribución de temperatura del refrigerante y del coeficiente de transferencia de calor a lo largo del canal. Esta información es utilizada por DIONISIO para calcular la temperatura exterior de la vaina, incluyendo el efecto del crecimiento de óxido, que luego sirve como condición de contorno para resolver el problema termomecánico en el dominio pastilla-*gap*-vainas en todos los sectores de la barra. La Figura 2.6 muestra un esquema

²Los **venenos quemables** son sustancias con una gran sección eficaz para la absorción de neutrones, cuya principal función es la de reducir el exceso de reactividad a principio del ciclo del reactor.

DIONISIO:
Barra Combustible

SubChanFlow:
Barra Combustible + Refrigerante

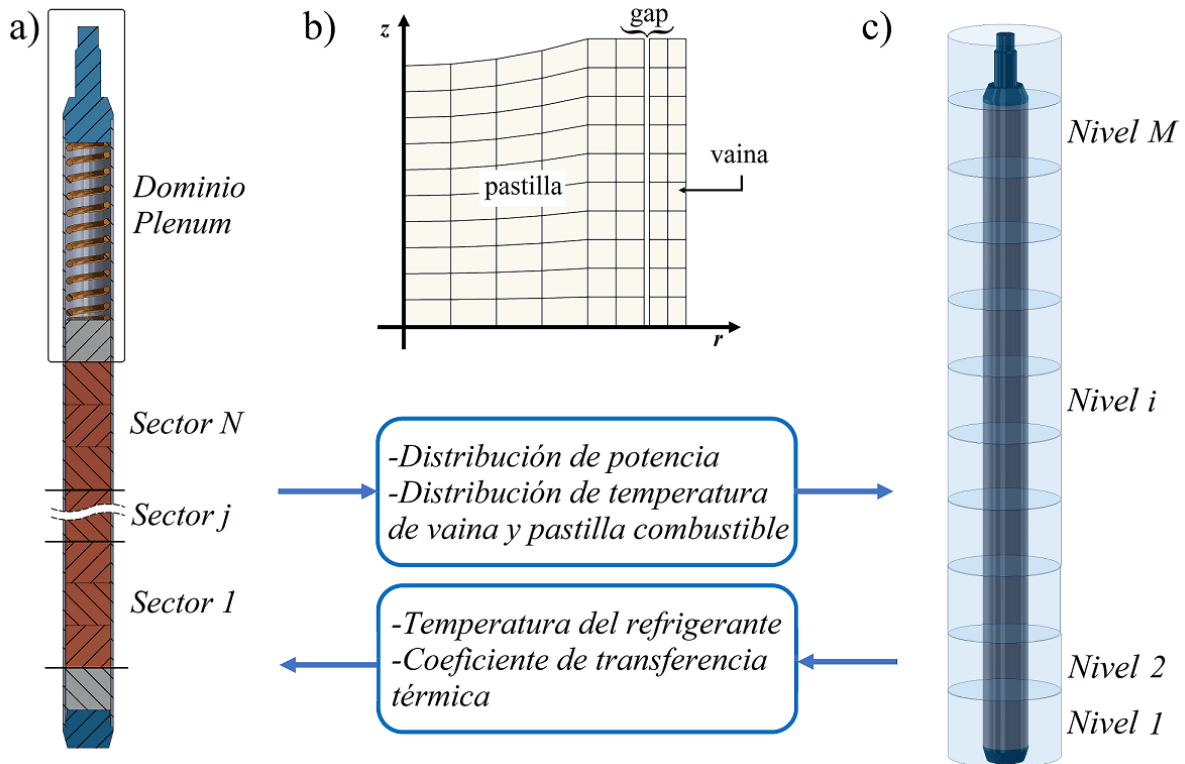


Figura 2.6: Esquema de los dominios utilizados en DIONISIO y SubChanFlow junto a las variables principales a intercambiar entre los códigos

general del dominio utilizado por ambos códigos y las principales variables que se intercambian. En particular, la Figura 2.6 b) muestra el dominio bidimensional con simetría axial del sistema *pellet-gap-cladding* (media pastilla en altura) que resuelve DIONISIO para cada sector en el que se divide la longitud activa de la barra. Además, el número de zonas o niveles axiales en que se divide el canal es independiente del número de sectores de la barra combustible.

Para sustituir la subrutina termohidráulica utilizada en DIONISIO por SubChanFlow fueron necesarias diversas modificaciones, algunas de las cuales se indican a continuación:

- Como puede observarse en la Figura 1.6, el código DIONISIO resuelve la termohidráulica dentro del *loop* de sectores y luego continúa con la parte termomecánica del problema. Debido a que la cantidad de zonas axiales en SubChanFlow es independiente a la cantidad de sectores, esta secuencia resulta poco práctica. Para solucionarlo, se procedió a remover el cálculo termohidráulico del *loop* de sectores, colocándolo antes dentro del *loop* temporal, con lo cual en cada paso de tiempo se resuelve toda la termohidráulica de la barra y luego en cada sector se llama a las variables necesarias. En este sentido, el canal se divide en un cierto número de zonas axiales (N_{local}) independientes al número de sectores de la barra (N_{sec}), tanto cuando se usa SubChanflow como cuando se emplea el modelo simplificado ya incorporado

a DIONISIO.

- Debido a lo mencionado anteriormente, fue necesario la incorporación de la subrutina `Hydra_set(potencia_lineal)` que, a partir de la potencia lineal de cada sector en cada paso de tiempo, realiza una interpolación para asignar el valor de potencia correspondiente a cada zona axial del canal N_{local} . En la Figura 2.7 se muestra un ejemplo de una potencia con perfil cosenoidal distribuida en 5 sectores para la barra y 15 zonas axiales para el canal. Cómo la interpolación utilizada es lineal, mientras más grande sea N_{local} la representación en el canal será más próxima a la ideal.
- Se ha añadido una interfaz interna para que `SubChanFlow` pueda recibir los parámetros de entrada que son gestionados por DIONISIO, tales como: especificaciones de la geometría de la barra, historia de potencia y del flujo de neutrones rápidos, condiciones iniciales del fluido, opciones de los modelos termohidráulicos y los parámetros numéricos necesarios.
- `prepare_to_scf()` y `prepare_to_dionisio()` corresponden a dos interfaces internas incorporadas durante este trabajo. Estas subrutinas permiten manejar el intercambio de las variables actualizadas para ambos códigos en cada paso de tiempo, en las que se tienen en cuenta las diferencias posibles entre la discretización axial del canal refrigerante y de la barra combustible.
- Previamente en DIONISIO, se ingresaba la velocidad [cm/s] y el caudal [cm³/s] del agua. La velocidad se mantenía constante a lo largo de todo el canal y el tiempo de irradiación, cambiando el caudal por efectos de los cambios dimensionales de la vaina. Durante estas modificaciones se propuso sustituir el caudal, como valor de entrada, por el flujo másico [kg/cm²s], que es un dato proporcionado generalmente en los experimentos. A partir de este valor se calcula el caudal másico que se mantiene constante y se calcula la velocidad en cada paso de tiempo y en cada zona axial. En caso de que el flujo másico no esté disponible, se puede ingresar la velocidad y en conjunto con la geometría del canal y la densidad a la temperatura inicial se calcula el caudal másico y luego se actualiza la velocidad en los pasos correspondientes.
- `SubChanFlow` posee una subrutina para calcular el flujo de calor y la distribución de la temperatura en la pastilla y la vaina del combustible. En este acoplamiento, estos cálculos se omiten y en su lugar todas las variables necesarias utilizadas posteriormente en la simulación del refrigerante se actualizan con los valores calculados con DIONISIO.

2.1.3. Evaluación del acople

Con el propósito de evaluar el acople DIONISIO/`SubChanFlow` (a partir de ahora denominado DIO-SCF), diferentes pruebas han sido realizadas considerando una barra rodeada

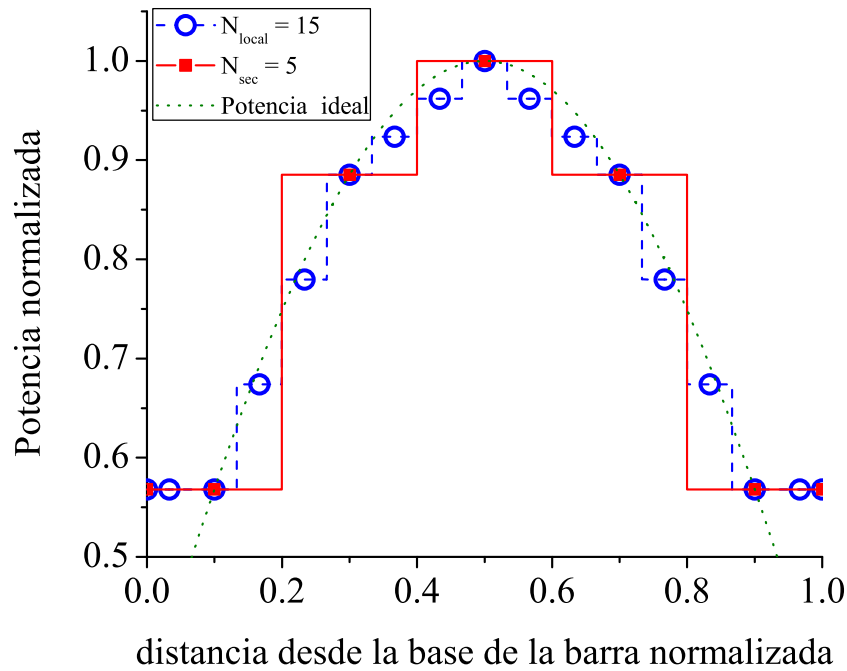


Figura 2.7: Distribución de potencia en los sectores y zonas axiales para la resolución termomecánica y termohidráulica.

de un canal refrigerante. A continuación se presentan los resultados más representativos y su comparación con los códigos trabajando de forma independiente (DIONISIO - DIO, SubChanFlow - SCF).

Durante las pruebas realizadas, los parámetros geométricos para la barra combustible y el canal refrigerante utilizados y las condiciones generales de operación se tomaron de una barra designada como TSQ002 en el experimento US-PWR 16x16 LTA Extended Burnup Demonstration Program (Para más detalles referirse al Capítulo 5) [25]. Para ejecutar el código, se consideró una historia de potencia hipotética que consiste en tres estados estacionarios consecutivos con valores nominales de 100, 200 y 300 [W/cm] en el centro de la altura de la barra combustible. Además, para la distribución de potencia a lo largo de la barra combustible, se adoptó un perfil cosenoidal con valor máximo en el centro de la altura (P_M) y un factor de longitud extrapolada (l_e/L) igual a 1.3 ($P_l(z) = P_M \cos(\pi z l_e)$). La temperatura de entrada del refrigerante fue de 563.15 [K]. El experimento proporciona datos para la potencia lineal a lo largo de la barra en 25 zonas de la mismas, las cuales están equiespaciadas. Es por ello que se utiliza la misma discretización tanto para el canal como para la barra combustible. A partir de la geometría y condiciones de operación para la barra TSQ002, se realizaron pruebas preliminares usando diferentes modelos para los regímenes de transferencia térmica de SCF entre los no se encontró una diferencia significativa al determinar las zonas de la barra en las que se presenta el régimen de transferencia *subcooled nucleate boiling*. Además, se encontró una diferencia menor al 1% en las temperaturas del refrigerante y de la vaina al usar las correlaciones de Gnielinski y de Dittus-Boelter para la transferencia en fase simple. Es por ello que, a menos que se indique lo contrario, en las simulaciones se utilizaron las correlaciones de Blasius y Armand para

los modelos de fricción en fase simple y doble, respectivamente (El modelo de Churchill requiere de la rugosidad externa de la vaina, cuyo dato no siempre está disponible), la correlación de Levy para evaluar el fenómeno de ebullición nucleada subenfriada y para la transferencia térmica en fase simple se utilizó la correlación de Dittus-Boelter.

Una primera evaluación consistió en comparar los resultados de la temperatura central de una pastilla empleando el acople y SCF actuando de manera independiente. En la Figura 2.8 se muestra la historia de potencia lineal utilizada junto con la comparación entre SCF y el acople DIO-SCF para la evolución de la temperatura en el centro del combustible en el sector más exigido (Sector central de la barra). En el comienzo de la historia se puede observar una diferencia entre los códigos debido a que, en DIO se establece una cierta cantidad de pasos iniciales a elección del usuario, en los cuales las condiciones de contorno se encuentran apantalladas para evitar un salto brusco, en las variables involucradas, que pudieran ocasionar inestabilidades en el cálculo. Este apantallamiento consiste en multiplicar a las variables de las condiciones de contorno, por ejemplo, presión y temperatura por un factor que crezca en cada paso de tiempo de forma lineal hasta llegar a 1.0 en el paso en el que la pantalla finaliza. Para potencias bajas (100 - 200 [W/cm]) se observa que el comportamiento de la temperatura es muy similar en ambos casos, con diferencias menores a los 50 [K]. Estas diferencias se deben esencialmente a diferencias en el coeficiente de conductividad térmica y a que SCF posee un modelo de relocación, que al iniciar su ejecución impone una deformación en la pastilla, reduciendo el tamaño del *gap*, por lo que la temperatura resulta ligeramente menor. Las mayores diferencias en temperatura y comportamiento se observan a la mayor potencia ensayada. Una vez alcanzada la potencia nominal máxima, mientras que SCF presenta un descenso de la temperatura

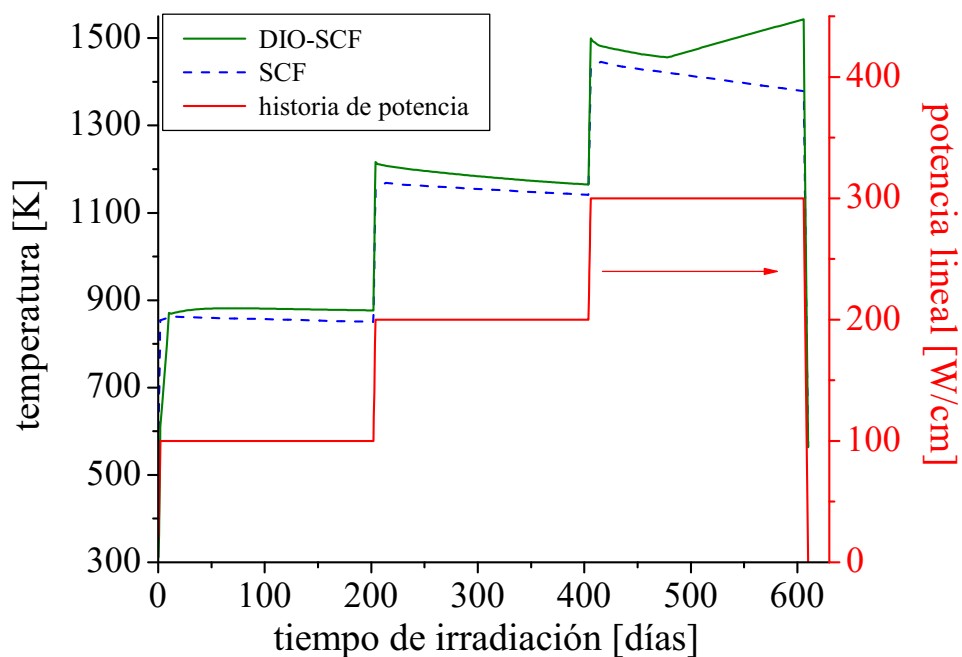


Figura 2.8: Historia de potencia utilizada en la evaluación del acople y comparación de evolución de la temperatura central obtenida con SCF y con el acople.

en el tiempo como consecuencia de la disminución del *gap*, DIO-SCF muestra un comportamiento similar hasta un punto en el que la temperatura comienza a aumentar. A medida que disminuye el *gap*, la temperatura de la pastilla disminuye debido al aumento en la conductividad del *gap*. Por otro lado, la conductividad de la pastilla depende fundamentalmente del quemado, que es progresivo, de la temperatura y de la porosidad [26]. La porosidad disminuye en un principio por la densificación y luego comienza a aumentar por el hinchamiento. Esta evolución de la porosidad compite con la evolución del *gap* para el efecto de la conductividad del sistema. El cambio de comportamiento para DIO-SCF ocurre debido a que en ese momento el *gap* se cierra completamente y deja de jugar un papel en la evolución de la conductividad, mientras que la porosidad sigue en aumento porque el hinchamiento es dominante, lo que disminuye la conductividad térmica de la pastilla, aumentando su temperatura.

Luego, se evaluó el comportamiento de la temperatura del refrigerante a lo largo de la barra combustible para observar el efecto que tiene el acople con el código termohidráulico frente a los modelos simplificados incluidos en DIO. En la Figura 2.9 se presentan los resultados del perfil de temperatura del refrigerante en función de la posición con respecto a la base de la barra para diferentes potencias, calculados con DIO y DIO-SCF. Como es de esperarse, se observa que a mayor potencia lineal, mayor temperatura general del refrigerante. En cuanto a la comparación entre códigos, se observa que, en todos los casos, la temperatura alcanzada en el acople resulta menor que en DIO. Estas diferencias pueden explicarse, ya que, si bien tanto DIO como DIO-SCF emplean la correlación de Dittus-

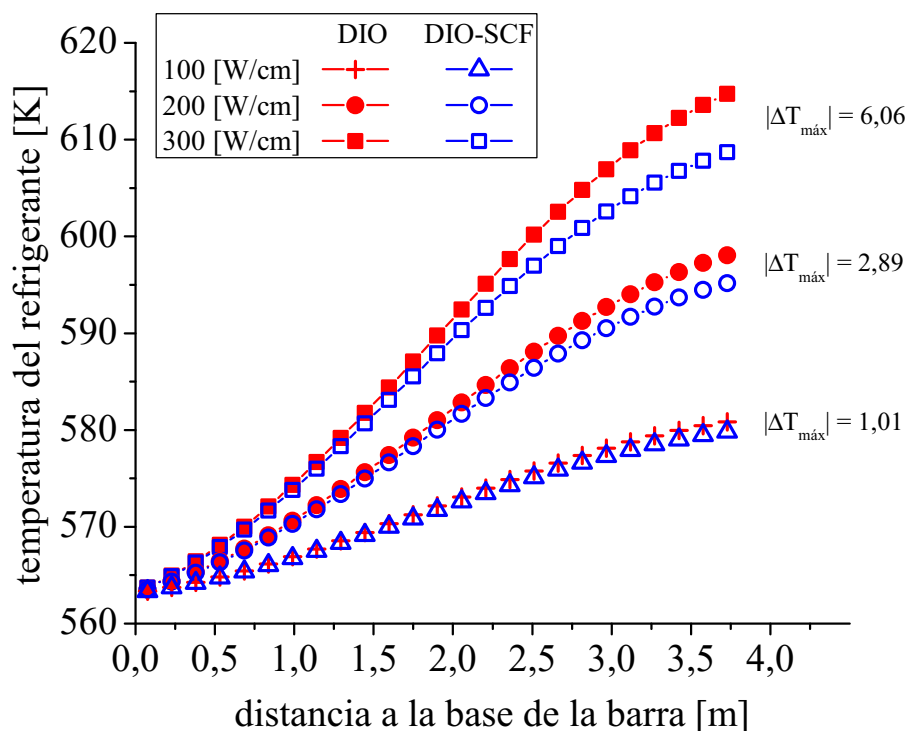


Figura 2.9: Comparación del perfil de temperatura del refrigerante entre DIO y DIO-SCF para diferentes potencias.

Boelter en el coeficiente de transferencia térmica, las correlaciones empleadas para las propiedades termodinámicas del agua en SCF son más refinadas que en DIO. Se destaca que para la menor potencia evaluada, la máxima diferencia observada es 1.01 [K], mientras que para la más alta es 6.06 [K], lo que corresponde aproximadamente a un 5 % y 15 % del salto de temperatura obtenido a lo largo del canal en DIO, respectivamente.

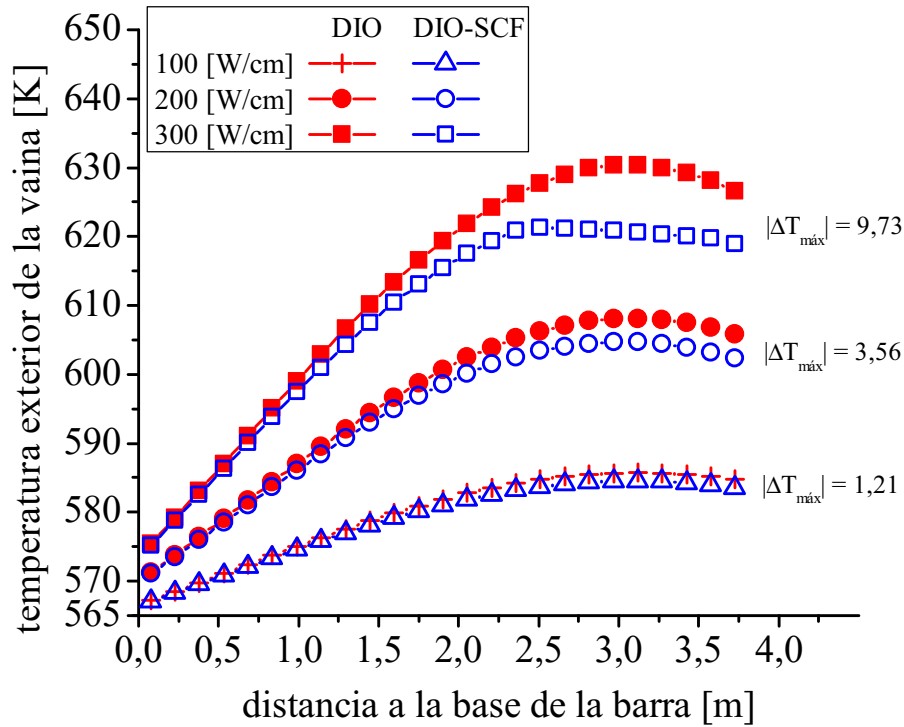


Figura 2.10: Comparación del perfil de la temperatura exterior de la vaina entre DIO y DIO-SCF para diferentes potencias.

De manera similar se analizó las diferencias presentadas en el cálculo de la temperatura exterior de la vaina de la barra combustible. En la Figura 2.10 se muestra una comparación entre el cálculo realizado con DIO y DIO-SCF de la temperatura de la vaina en función de la altura de barra combustible para las diferentes potencias empleadas en esta evaluación. Se observa que, para 100 y 200 [W/cm], las variaciones de temperatura entre DIO y DIO-SCF son inferiores a 3,6 [K], mientras que a 300 [W/cm] existen diferencias de hasta 10 [K], aproximadamente. Debido a que ambos códigos utilizan el modo de transferencia de calor en fase simple para las menores potencias, las diferencias observadas se deben principalmente a cómo se definen las propiedades termodinámicas del agua en cada programa, cómo se mencionó previamente. Sin embargo, para 300 [W/cm] de potencia, el modelo termohidráulico de DIO-SCF establece que bajo las condiciones ensayadas la transferencia térmica ocurre por el fenómeno de ebullición nucleada subenfriada (*subcooled nucleate boiling*) en el tercio superior de la vaina, lo que explicaría el comportamiento observado y la mayor diferencia térmica encontrada.

Aunque las diferencias de temperatura entre los códigos pueden resultar relativamente pequeñas, esto puede tener implicaciones importantes en el crecimiento del óxido, lo cual

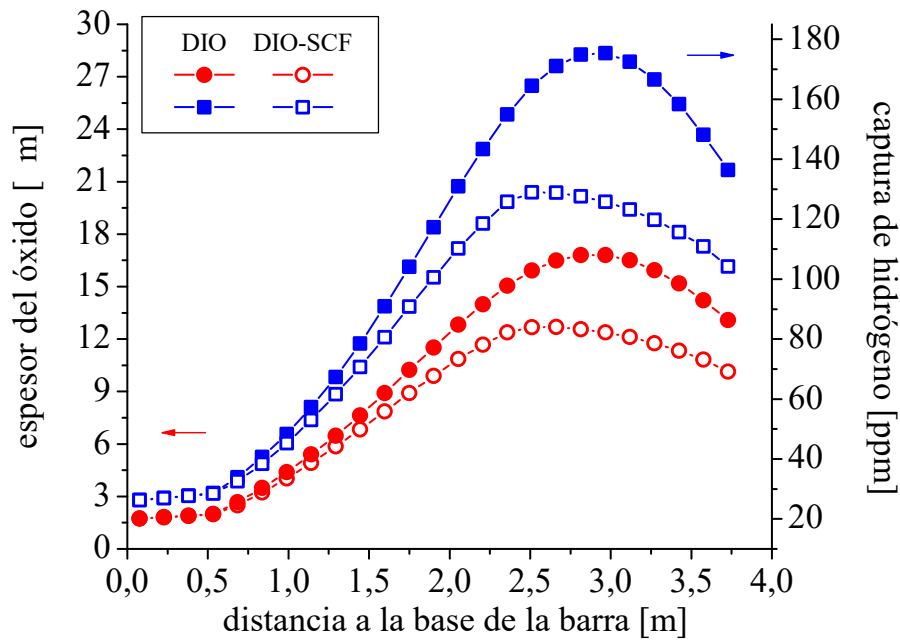


Figura 2.11: Perfil final del espesor de óxido y la captura de hidrógeno a lo largo de la barra combustible obtenido por medio del cálculo numérico para la historia de potencia mostrada en la Figura 2.8

deteriora las propiedades térmicas del material, y la absorción de hidrógeno, disminuyendo así sus propiedades mecánicas. Esto se puede observar en la Figura 2.11, en la que se presentan los perfiles finales de la capa de óxido y de la absorción de hidrógeno a lo largo de la barra combustible para el test numérico descrito anteriormente. En las pruebas

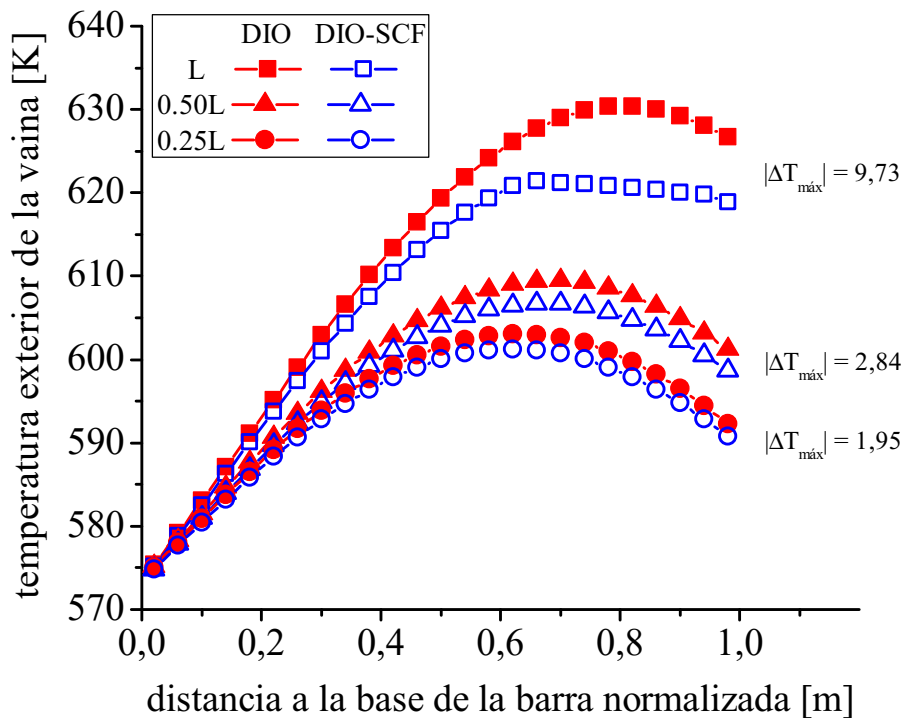


Figura 2.12: Temperatura exterior de la vaina a una potencia lineal del 300 [W/cm] para distintas longitudes.

realizadas en este trabajo, una diferencia de hasta 10 [K] en la temperatura del *cladding* representa una disminución de hasta el 28.6 % en la captura de hidrógeno y hasta 26.6 % en el espesor de la capa de óxido al comparar entre DIO-SCF y DIO. Además, se observa que el máximo valor alcanzado en estas variables para el acople se ve corrido levemente hacia el centro de la barra con respecto a DIO.

En conjunto con la prueba descrita anteriormente, se analizó el efecto de la longitud de la barra en la temperatura del *cladding*. Esto se muestra en la Figura 2.12 donde se presenta el perfil de temperatura exterior de la vaina a una potencia lineal de 300 [W/cm] para diferentes longitudes, siendo L la longitud nominal descrita en el experimento [25] ($L = 3.8$ [m], aprox.). A medida que disminuye la longitud de la barra combustible, el aumento entálpico del refrigerante es menor, obteniéndose menores valores de temperatura en la vaina. Esto hace que la temperatura no sea lo suficiente para activar el modo de transferencia por ebullición nucleada subenfriada en las barras más cortas. En forma similar a lo observado anteriormente, el acople alcanza temperaturas menores que DIO, siendo más notable la diferencia a medida que se aumenta el largo de la barra.

2.1.4. Validación del acople con datos experimentales

Luego de las primeras evaluaciones del acople y de las principales observaciones de su comportamiento, se realizó una primera aproximación para su validación utilizando datos del experimento US-PWR 16x16 LTA Extended Burnup Demonstration Program [25]. Para ello se seleccionaron cuatro barras combustibles designadas como TSQ002, TSQ004, TSQ022 y TSQ024 irradiadas hasta 53.2, 50.5, 58.1 y 54.7 [MWd/kgU], respectivamente. Las dos primeras barras contenían pastillas completas estándar y las últimas, pastillas anulares. En todos los casos estudiados, el combustible consistió en UO_2 con un enriquecimiento del 3.48 % y el material del *cladding* fue Zircaloy-4. Todas las dimensiones geométricas y condiciones generales de operación están dadas por [25] y pueden consultarse en el capítulo 5.

El experimento analizado proporcionaba valores para la temperatura externa del *cladding* a lo largo de la barra combustible y a diferentes valores de potencia promedio sobre la barra. Sin embargo, estos datos no corresponden a medidas experimentales, sino a un cálculo a partir de la temperatura de entrada del refrigerante (563.15 [K]) y una temperatura de salida promediada en todo el tiempo de operación (595.15 [K]), considerando que la temperatura del refrigerante aumenta de forma lineal. Para poder realizar comparaciones entre los resultados obtenidos en este trabajo y los datos proporcionados, se realizó una corrección de esos datos. Esta corrección consiste en utilizar la misma interpolación lineal para el refrigerante entre la temperatura de entrada y la de salida en el instante de tiempo analizado. Esta temperatura de salida se tomó como el promedio entre la temperatura calculada por DIO y por DIO-SCF.

En la Figura 2.13, se presenta una comparación entre los cálculos obtenidos con DIO

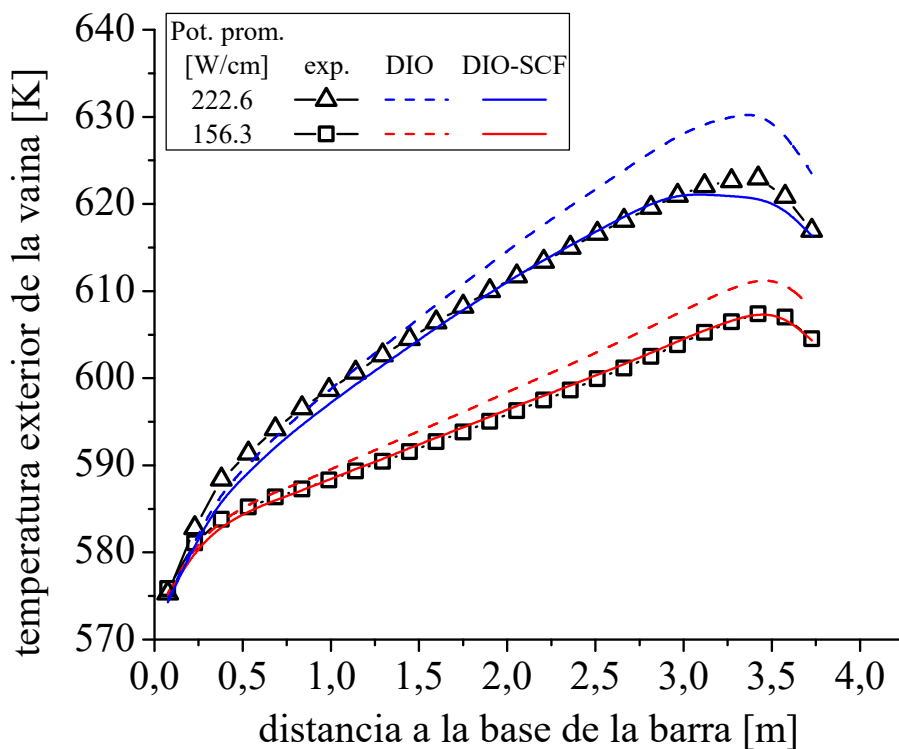


Figura 2.13: Comparación de la temperatura exterior de vaina obtenida con DIO y DIO-SCF para TSQ004 [25]

y DIO-SCF para la temperatura exterior de la vaina de la barra TSQ004 sometida a dos potencias lineales distintas. En conjunto, se superponen los datos corregidos proporcionados en el experimento. A pesar de algunas diferencias observadas, los resultados obtenidos con el acople están en mayor concordancia con los del experimento. Para una potencia lineal de 222.6 [W/cm] el acople registra un régimen de ebullición nucleada subenfriado para la transferencia de calor entre 2.8 y 3.5 [m], que no puede ser simulado con el modelo simple de DIO.

La Figura 2.14 muestra la comparación del espesor del óxido exterior de la vaina entre los valores calculados utilizando los códigos y los medidos en el experimento. Aquí se hace más evidente la mejora introducida por el acople, ya que el espesor de óxido depende en gran medida de la temperatura del *cladding*. Cuando solo se utiliza DIO, las diferencias con los valores experimentales pueden llegar hasta el 30 %, mientras que DIO-SCF alcanza un buen acuerdo con los datos experimentales para todas las barras, excepto para TSQ002 en la que DIO muestra un mejor ajuste. En todos los casos, se observa que por debajo del primer tercio de la barra combustible los valores experimentales superan a los calculados numéricamente. Los productos de corrosión de diferentes zonas del reactor que son arrastrados por el refrigerante (CRUD) y depositados sobre las barras podrían dar cuenta de los valores encontrados, ya que disminuye la conductividad térmica, aumentando de esta forma la temperatura y por consiguiente el espesor de óxido. Sin embargo, en los informes del experimento no hay referencias a este fenómeno para fundamentar esta hipótesis y DIONISIO tampoco cuenta actualmente con modelos que permitan tener en

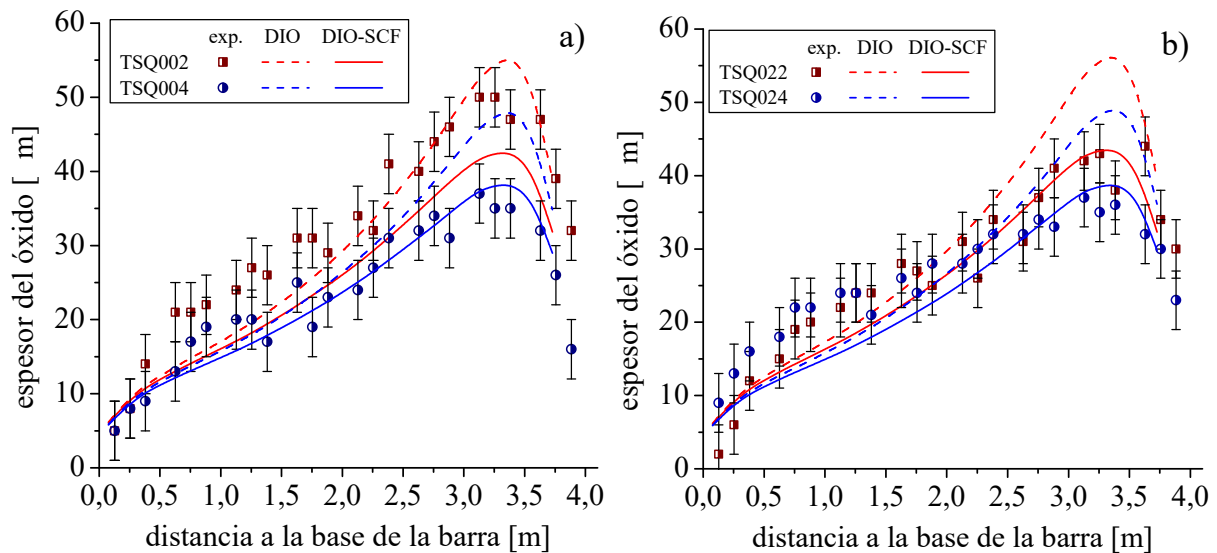


Figura 2.14: Comparación del espesor del óxido a lo largo de la vaina entre las simulaciones y los datos experimentales de diferentes barras del programa US-PWR 16×16 LTA [25]

cuenta estos casos.

Finalmente, en la Figura 2.15 se representan los perfiles de captura de hidrógeno calculados y los datos experimentales para las barras en donde fueron medidos: TSQ002 y TSQ022. Este parámetro está estrechamente relacionado con el mecanismo de formación

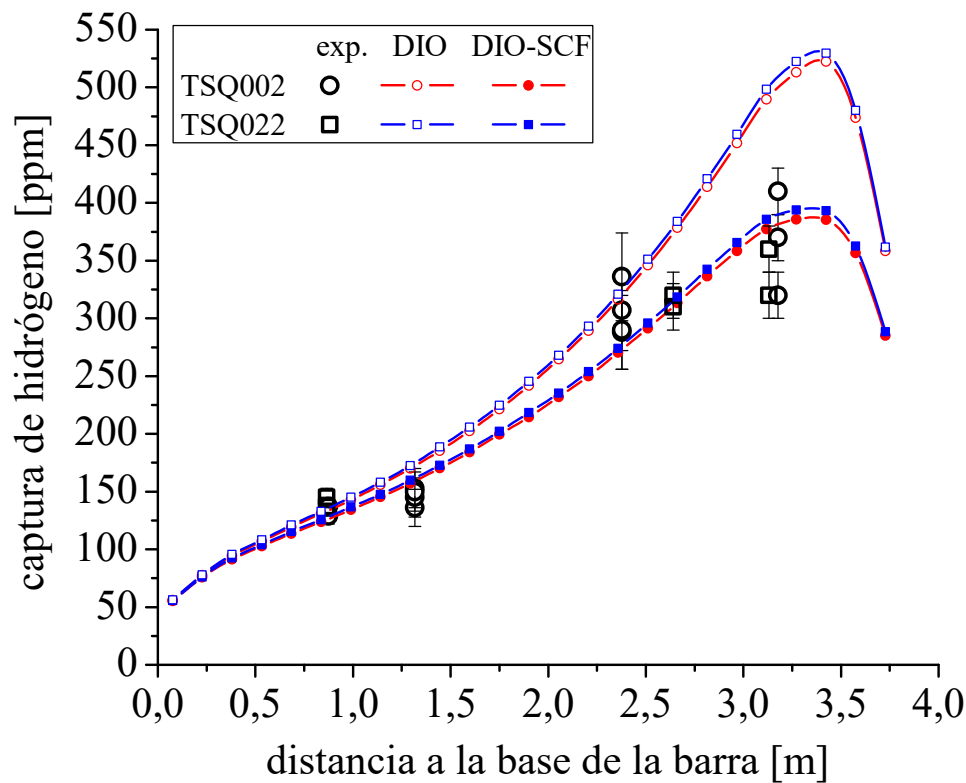


Figura 2.15: Comparación de la captura de hidrógeno a lo largo de la vaina entre las simulaciones y los datos experimentales de diferentes barras del programa US-PWR 16×16 LTA [25].

de óxido, por lo que la temperatura de la vaina desempeña un papel importante en la captura de hidrógeno [16]. DIO-SCF muestra un mejor acuerdo dentro del rango de los valores medidos, especialmente en la zona de mayor absorción, en donde DIO computa un valor máximo un 34 % superior al obtenido con el acople.

Además, se utilizó el experimento IFPE/OSIRIS R3 para testear el acople desarrollado en este trabajo. En particular, se seleccionaron las barras PWR designadas como G07 y H09, que fueron irradiadas hasta 34.75 y 46 [MWd/kgU], respectivamente. Los materiales de las barras de combustible fueron UO_2 para la pastilla y Zircaloy-4 para la vaina. Todos los parámetros geométricos y las condiciones operativas están dadas por Menard [27, 28] y pueden consultarse en el capítulo 5.

La figura 2.16 presenta el espesor de óxido calculado a lo largo de la barra combustible realizado con DIO y DIO-SCF y su comparación con los datos medidos. El error marcado en el gráfico de ± 4 [μm], se tomó como referencia del experimento dado por Lyon y Turnbull [25] ya que no fue informado en el experimento analizado. Si bien se observan ciertas diferencias, el acople muestra un mejor comportamiento que DIO trabajando como código independiente, y se obtienen valores en buen acuerdo con los experimentales.

A pesar de las diferencias analizadas y mostradas en la evaluación y validación del acople, la incorporación de SCF como nueva subrutina termo hidráulica en DIO indicó importantes ventajas. En especial, se logró una mejor descripción de los modos de

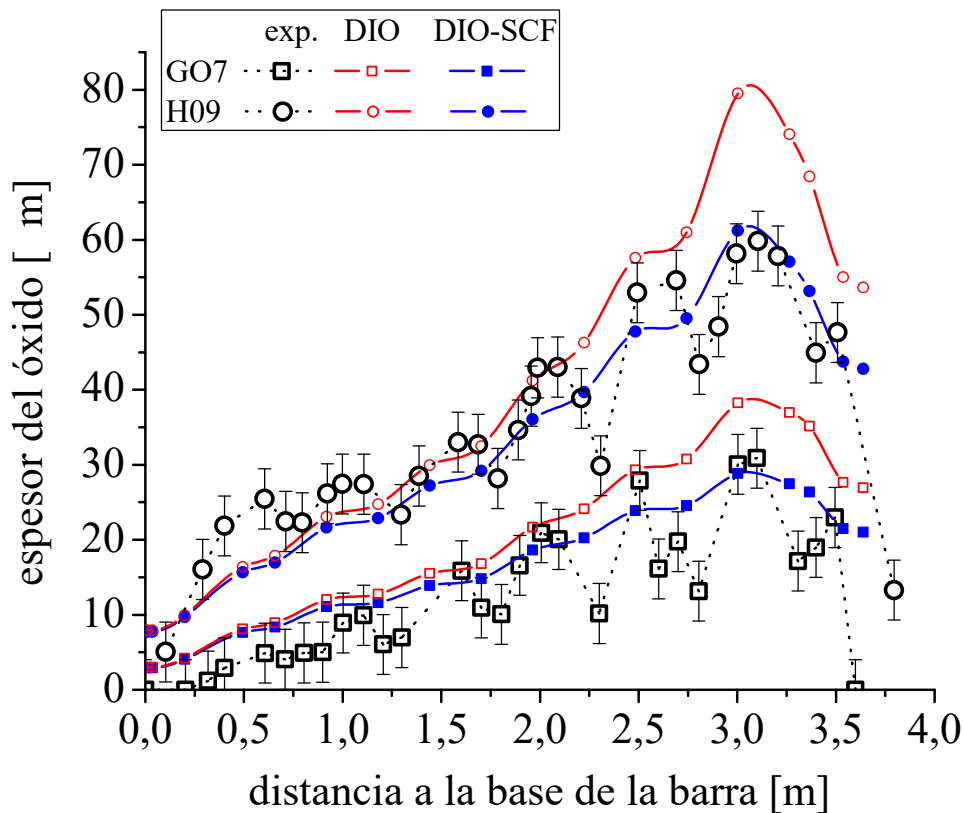


Figura 2.16: Crecimiento del óxido de la vaina calculado con DIO y DIO-SCF y su comparación con los con valores medidos en el experimento IFPE/OSIRIS R3 [27, 28]

transferencia térmica entre la barra combustible y el refrigerante, obteniéndose mejores resultados para la temperatura de la vaina y sus principales variables asociadas: crecimiento de óxido y captura de hidrógeno; permitiendo así una mejor descripción general del comportamiento del combustible nuclear bajo irradiación.

2.2. Modelos termohidráulico para reactores de investigación

Un reactor experimental requiere de una instalación modesta en comparación con las centrales de potencia y todas las variables implicadas se ven reducidas en magnitud y exigencia. Los reactores de investigación operan con flujos neutrónicos de entre 10^{13} y 10^{15} [neutrones/cm²s] y potencias térmicas de hasta 20 [MW], aproximadamente, lo que demanda altos niveles de enriquecimiento del combustible empleado. El núcleo del reactor, formado por placas ensambladas en estructuras de aluminio, es refrigerado por agua que circula por entre las placas mediante un sistema de bombeo. El agua ingresa a aproximadamente 40 [°C] (313.15 [K]) y debido al flujo calórico emerge a unos 65 [°C] (338.15 [K]), dependiendo del diseño del reactor. Además, las velocidades empleadas suelen estar por encima de los valores empleados en reactores de potencia, entre 10 y 12 [m/s]. Las dimensiones usuales de las placas son de aproximadamente entre 60 y 70 [cm] de largo, entre 6 y 7 [cm] de ancho y entre 0.1 y 0.2 [cm] de espesor. Cada elemento combustible se construye uniendo cierto número de placas (entre 19 y 21) separadas por distancias del orden de 0.2-0.3 [cm] en cavidades prismáticas que van a ocupar posiciones determinadas dentro del núcleo.

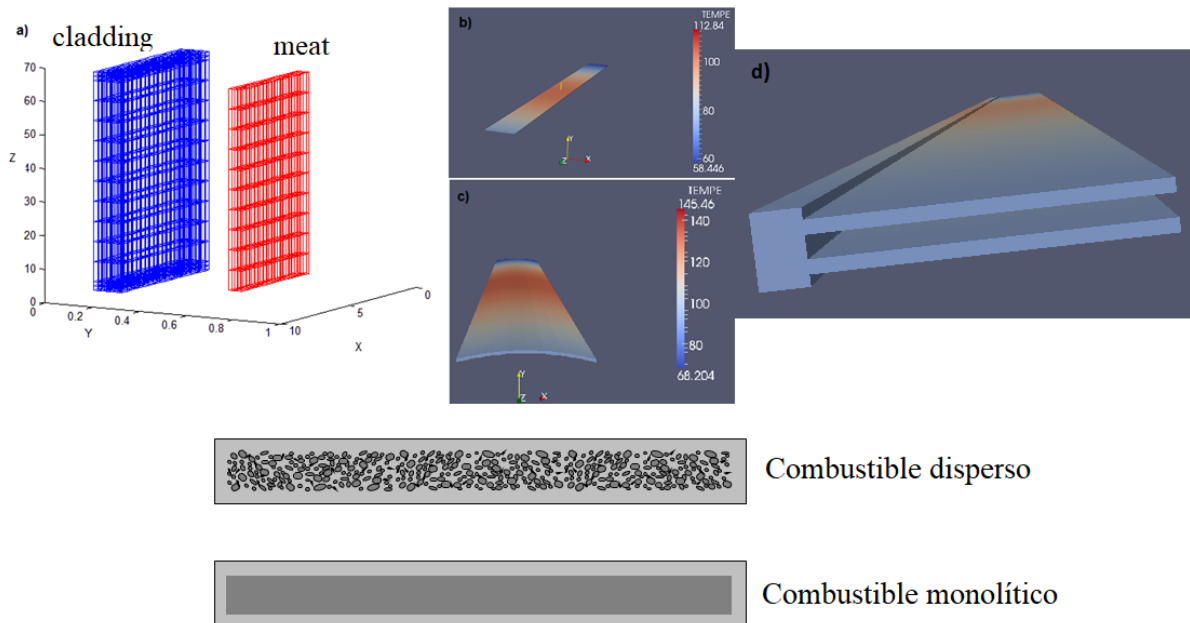


Figura 2.17: a) Ejemplo de una malla de una placa en DIONISIO. El *meat* y el *cladding* se representan en mallas diferentes. Ejemplos de distribución de temperatura b) en una placa plana, c) en una placa curva y d) en un dominio de dos placas [14, 29]

El código DIONISIO posee una versión para simular el comportamiento de placas combustibles. En forma similar a su versión de potencia, el código emplea el método de los elementos finitos para discretizar el dominio y permite una simulación detallada de la evolución de los parámetros físicos más relevantes de un elemento combustible durante la permanencia dentro de un reactor. Para resolver las ecuaciones diferenciales corres-

pondientes a los problemas térmicos y elástico-plásticos que tienen lugar en una placa de combustible nuclear, se emplea el método de elementos finitos en coordenadas cartesianas con elementos hexaédricos, lineales, bilineales o cúbicos en su versión 3D. El código admite diferentes opciones para construir el dominio de trabajo: se puede seleccionar media placa o placa completa, placas curvas o planas. En la Figura 2.17 se puede observar un ejemplo del mallado del combustible, en donde para una mejor visualización se discretizaron por separado la estructura del *cladding* y el *meat* del combustible. Además, en b) y c) se pueden ver ejemplos de la distribución de temperatura que se puede obtener con DIONISIO en placas planas y curvas, respectivamente. Durante la ejecución del código, sobre el dominio discretizado se calcula la distribución de temperatura y las solicitaciones mecánicas. Además, sobre cada elemento finito se calcula la evolución de las partículas de combustible, de la matriz y de los poros, obedeciendo a la temperatura local en que se encuentren.

Como se mencionó en secciones anteriores, para la ejecución del código y la resolución del problema termomecánico, DIONISIO requiere como condición de contorno la temperatura en el exterior de la placa que es provista por el modelo termohidráulico simplificado que se describe a continuación.

2.2.1. Descripción del modelo para canales entre placas en DIONISIO

Actualmente, el código aproxima la termohidráulica del canal refrigerante mediante un modelo unidimensional. El calor producido por unidad de tiempo en un volumen elemental del combustible a una distancia z en la dirección longitudinal, está dado por Foster y Wright [30]:

$$H(z) = H_M \cos\left(\frac{\pi z}{l_e}\right) \quad (2.8)$$

donde H_M es la potencia volumétrica máxima y l_e es la longitud extrapolada cuyo valor es mayor a la longitud física de la placa y es un parámetro geométrico del reactor. Para calcular la distribución de temperatura en el combustible tipo placa se resuelve la ecuación del calor en estado estacionario en un dominio tridimensional en coordenadas cartesianas:

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(\kappa_{x,n} \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\kappa_{y,n} \frac{\partial T}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_{z,n} \frac{\partial T}{\partial z} \right) + H_n = 0 \quad (2.9)$$

donde, el subíndice n indica núcleo (*meat*), gap, vaina u óxido, los subíndices x , y o z incorporan la posibilidad de anisotropía en el coeficiente de conductividad κ y T es la temperatura. Además, $H_n = 0$ en los casos de gap, vaina y óxido, ya que el único que genera energía es el combustible del *meat*. Como condiciones de contorno se impone la temperatura en la superficie externa de la vaina $T_s(z)$ (condición de Dirichlet) y $\nabla T = 0$ en el resto de la frontera (condición de Neumann).

Para resolver este sistema, se supone que la extracción del calor se realiza exclusivamente a través de las caras paralelas al plano x-z (ver Figura 2.17). Como se mencionó

en la Sección 2.1.1, la temperatura en la superficie de la placa puede obtenerse a través de la Ec. 2.3 modificando el perímetro de contacto de una barra con el refrigerante (πd_V) por el de una placa ($2a$, siendo a el ancho de la placa):

$$T_V(z) = T_R(z) + \frac{P_l(z)}{2ah_{eff}} \quad (2.10)$$

Para la simulación numérica es necesario considerar todas las fases que median entre el núcleo de la placa y el agua, que dependen del diseño del combustible. Si la placa combustible contiene un *gap* entre el núcleo y la vaina (como es el caso de ciertos combustibles monolíticos), éste estará ocupado por una mezcla de gases (los de fabricación más los productos de fisión) que estarán en contacto con el núcleo de la placa. En ausencia de *gap*, (como ocurre en los combustibles dispersos o monolíticos que se fabrican por colaminación) el núcleo está en contacto directo con la vaina. Esta puede estar cubierta o no de un óxido en la superficie de contacto con el agua, dependiendo del material en que se constituya. Si la vaina es de aluminio, es necesario tener en cuenta la existencia de una capa de óxido, ya que, por su baja conductividad térmica, aumenta la temperatura del dominio. Su crecimiento es función de la temperatura de trabajo, del flujo de calor, de la velocidad y de la composición química del agua. DIONISIO permite seleccionar diferentes modelos para el crecimiento de la capa de óxido sobre la vaina de aluminio [31, 32]. Para vainas de Zircaloy no se considera crecimiento de óxido debido a que a las temperaturas de trabajo en reactores de investigación su espesor es despreciable.

El cálculo térmico es altamente dependiente de los coeficientes de conductividad utilizados. Para el caso de combustible monolítico, ellos dependen, en general, solamente de la temperatura y de la porosidad, mientras que, en el caso de un combustible disperso, dependen también de la mezcla y, fundamentalmente, de los productos de reacción generados en la interfase combustible-matriz [33].

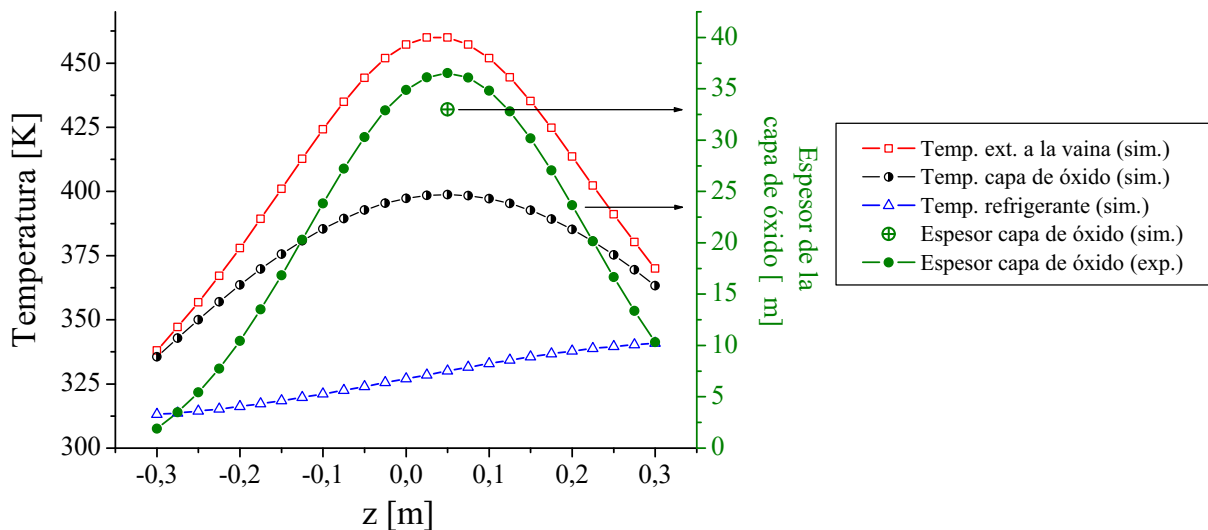


Figura 2.18: Distribución de temperatura y espesor de óxido calculados con DIONISIO [14].

En la Figura 2.18 se observa un ejemplo de las capacidades de cálculo del código DIONISIO-PLACA con el modelo termo hidráulico presente para un elemento combustible con vaina de aluminio sometido a irradiación. Se muestra la distribución de temperatura externa de la vaina, de la capa de óxido y del refrigerante en función de la altura z de la placa. Además, se muestra la distribución del espesor de la capa de óxido que se desarrolla sobre la vaina como consecuencia del contacto con el refrigerante a un pH igual a 6.5. Como puede observarse, a mayor temperatura de la vaina, mayor es el crecimiento del óxido. El resultado experimental para el máximo espesor de óxido es muy próximo al realizado con el cálculo numérico.

Como se pudo observar previamente, en el ejemplo de simulación, el crecimiento de óxido en ambas placas que delimitan al canal, en conjunto con las deformaciones que pueden sufrir durante la irradiación, pueden afectar la estabilidad mecánica de las placas y su desempeño. Este crecimiento de óxido depende de la temperatura, de la velocidad del fluido y del pH del mismo. Así mismo, las placas sufren cambios dimensionales asimétricos debido al proceso de hinchamiento del combustible. Por otro lado, las altas velocidades del fluido pueden generar vibraciones entre las placas e incluso condiciones de inestabilidad que pueden llevar al pandeo de las mismas, generando así una zona de contacto y baja transferencia de calor. Finalmente, el aumento de temperatura debido a los fenómenos mencionados previamente, pueden generar burbujas de vapor en el refrigerante que dificulten la extracción de calor, produciendo un aumento sinérgico de la temperatura, pudiendo derivar en condiciones de accidente en el núcleo.

Teniendo en cuenta todo lo mencionado anteriormente, para poder realizar un estudio más realista dentro de un código de combustibles, es necesario efectuar un enfoque más detallado de los fenómenos involucrados durante la interacción fluido-estructura. Un primer paso consiste en resolver las ecuaciones de Navier-Stokes en el dominio del fluido. A continuación, se muestra el estado de avance de esta etapa.

2.2.2. Resolución de las Ecuaciones de Navier-Stokes

Como se mencionó en secciones anteriores, el estudio de la dinámica de fluidos se basa en tres principios [34, 35]:

- Conservación de la masa
- Conservación del momento - 2^a ley de Newton
- Conservación de la energía

En particular, el sistema de ecuaciones que resulta de resolver simultáneamente la conservación de la masa y del momento se conoce como ecuaciones de Navier-Stokes (N-S). Utilizando un enfoque Euleriano, es decir, usando un volumen de control fijo y el fluido lo atraviesa por sus caras, para fluidos incompresibles, viscosos, Newtonianos y de densidad constante (como puede aproximarse en el caso de estudio presente), se obtiene

el siguiente sistema de ecuaciones general:

Balance de masa (incompresibilidad):

$$\varepsilon_v = \frac{\partial v_i}{\partial x_i} = 0 \quad (2.11)$$

Balance de *momentum*

$$\rho \left(\frac{\partial v_i}{\partial t} + v_j \frac{\partial v_j}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} - \rho f_i = 0 \quad i = 1, 2, 3 \quad (2.12)$$

en donde, los subíndices i, j toman valores enteros entre 1 y 3 indicando la dimensión del dominio analizada, v es la velocidad del fluido, σ_{ij} es la componente del tensor de tensiones, ρ es la densidad y ρf es la fuerza de cuerpo en la dirección correspondiente.

El sistema (2.11) - (2.12) se complementa con las siguientes ecuaciones constitutivas y las condiciones de contorno:

$$\sigma_{ij} = \tau_{ij} - p\delta_{ij} \quad (2.13)$$

$$\tau_{ij} = \mu \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.14)$$

$$v_i = v_i^p \quad \text{en} \quad \Gamma_u \quad (2.15)$$

$$\sigma_{i,j} n_j = t_i^p \quad \text{en} \quad \Gamma_t \quad (2.16)$$

en donde τ_{ij} es la componente desviadora, δ_{ij} es la función delta de Kronecker, μ es la viscosidad dinámica, v_i^p denota las velocidades prescritas en la frontera de Dirichlet Γ_u y t_i^p son las tensiones en la frontera de Neumann Γ_t con vector normal $\vec{n} = [n_1, n_2, n_3]^T$ (para problemas en 3D). La frontera total es $\Gamma = \Gamma_u \cup \Gamma_t$.

Algunos comentarios con respecto a las condiciones de contorno se hacen relevantes en este punto [36]:

- Experimentalmente se ha observado que los fluidos se adhieren a las superficies sólidas. Esta condición *no-slip* (sin deslizamiento) se puede escribir como $\vec{v} \cdot \vec{n}_t = v_{wall_t}$, en donde v_{wall_t} es la velocidad tangencial de la pared y \vec{n}_t es el vector tangencial a la superficie. Además, si la superficie es impermeable, la velocidad normal a la misma debe ser cero. Esta es la condición de no penetración que se escribe como $\vec{v} \cdot \vec{n} = v_{wall} \cdot \vec{n}$. Estas condiciones en conjunto resultan en que la velocidad del fluido debe ser igual a la velocidad de la pared o superficie.
- En la entrada se impone la velocidad (v_i) como condición de Dirichlet. Esto es equivalente a imponer el flujo másico en el caso de fluidos incompresibles.
- Generalmente, la presión p se impone a la salida del fluido en conjunto con la suposición que el fluido ha alcanzado un estado completamente desarrollado (*fully-developed flow*), es decir: $\frac{\partial v_x}{\partial x} = \frac{\partial v_y}{\partial y} = \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0$. Se debe aclarar que al imponer esta última

suposición se debe considerar un dominio lo suficientemente largo para que el flujo se desarrolle naturalmente.

El régimen laminar de un flujo puede resolverse mediante el sistema de ecuaciones presentado anteriormente tanto en condiciones estacionarias como con dependencia temporal. A medida que aumenta el número de Reynolds (Re), el flujo exhibe oscilaciones que lo transforman en un régimen turbulento y la resolución numérica presenta importantes desafíos. La turbulencia es un fenómeno natural que ocurre cuando están presentes grandes gradientes de velocidad, generando perturbaciones importantes en el dominio del fluido tanto en tiempo como en espacio. En los flujos turbulentos intervienen estructuras de tipo torbellino (conocidas como eddy) de diferente escala, donde las estructuras más pequeñas están inmersas en estructuras mayores. Un enfoque utilizado para la resolución de N-S en casos turbulentos es DNS - *Direct Numerical Simulation* (Simulación numérica directa). Sin embargo, usar esta herramienta requiere de una gran cantidad de grados de libertad para que los elementos del dominio sean lo suficientemente pequeños para contemplar el movimiento en todas sus escalas. Para un flujo turbulento con $Re = 10000$ se requieren 3.6×10^8 grados de libertad en $3D^3$, lo que hace que el costo computacional sea muy elevado.

Debido a que la turbulencia se caracteriza por fluctuaciones aleatorias, los métodos estadísticos se han estudiado y se siguen analizando en la actualidad. En este sentido, una práctica común es la resolución de las ecuaciones de Navier-stokes promediadas (RANS - *Reynolds Average Navier-Stokes*). Se basa en que, para un dado tiempo, una cantidad F puede definirse como la suma algebraica de una cantidad promediada en el tiempo \bar{F} y su fluctuación F' : $F = \bar{F} + F'$, tal que:

$$\bar{F} = \lim_{\Delta t \rightarrow \infty} \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} F(x, t) dt \quad (2.17)$$

$$\bar{F}' = \lim_{\Delta t \rightarrow \infty} \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} F'(x, t) dt = 0 \quad (2.18)$$

Aplicando este concepto a las variables del flujo (\bar{v}_i , \bar{p} , etc), se obtiene [36, 38]:

$$\bar{\varepsilon}_v = \frac{\partial \bar{v}_i}{\partial x_i} = 0 \quad (2.19)$$

$$\rho \left(\frac{\partial \bar{v}_i}{\partial t} + \bar{v}_j \frac{\partial \bar{v}_j}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_j} (\bar{\tau}_{ij} + \bar{\tau}_{ij}^r) + \frac{\partial \bar{p}}{\partial x_i} - \rho \bar{f}_i = 0 \quad (2.20)$$

en donde $\bar{\tau}_{ij}^r = -\overline{\rho v'_i v'_j}$ se denomina tensor de Reynolds y da cuenta de las tensiones aparentes debido a las fluctuaciones turbulentas.

De acuerdo a la hipótesis de Boussinesq, el tensor de Reynolds puede escribirse con la

³Una aproximación para los grados de libertad en 3D es $N \sim 64(0.1Re)^{9/4}$ de acuerdo con Schiestel [37]

introducción de la viscosidad de Eddy (μ_T) o viscosidad cinemática aparente, tal que [36]:

$$\bar{\tau}_{ij}^T = \mu_T \left(\frac{\partial \bar{v}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{v}_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.21)$$

La viscosidad de Eddy no es una propiedad del fluido sino del flujo y no existe una ley universal que permita determinar esta cantidad. Se han propuesto diversos modelos para aproximar μ_T que pueden involucrar o no la adición de nuevas ecuaciones diferenciales. En este trabajo se utiliza un modelo algebraico que no requiere la incorporación de una nueva ecuación diferencial acoplada a las ecuaciones anteriores. A partir de Houzeaux [36] y Chung [38]:

$$\mu_T = \rho l_{ed}^2 \left[\left(\frac{\partial \bar{v}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{v}_j}{\partial x_i} \right) \frac{\partial \bar{v}_i}{\partial x_j} \right]^{1/2} \quad (2.22)$$

en donde, l_{ed} es la longitud característica de Eddy. Una expresión para esta longitud puede encontrarse en: [39]

$$l_{ed} = \kappa y [1 + \exp(-y/A)] \quad (2.23)$$

$$A = 26 \cdot \frac{\mu}{\rho} \left(\frac{\tau_w}{\rho} \right)^{-1/2} \quad (2.24)$$

en donde, $\kappa = 0.41$ es la constante de von Kármán, τ_w es la tensión tangencial en la superficie e y es la distancia a la superficie.

Un aspecto importante a considerar es el comportamiento del fluido en la proximidad de una superficie sólida. El flujo turbulento cerca de una pared plana puede dividirse en tres regiones principalmente. Sobre la pared, la velocidad del fluido es cero, tal cual se expuso previamente, y en una capa delgada por encima de esta, la velocidad del fluido puede modelarse con un comportamiento lineal con respecto a la distancia a la pared. Esta región se denomina sub capa viscosa o sub capa laminar (*Viscous Sublayer*). Luego existe una capa intermedia denominada capa *buffer*, en donde las tensiones turbulentas comienzan a dominar sobre las tensiones viscosas y finalmente se tiene una región en la que el flujo es totalmente turbulento, la influencia de la pared desaparece y la velocidad media del fluido puede representarse en función del logaritmo de la distancia a la pared. Las capas viscosa y de *buffer* son muy delgadas, siendo entre ambas aproximadamente 100 veces menor en tamaño con respecto a la región de comportamiento logarítmico (Ver Figura 2.19).

Debido a que el espesor de la capa *buffer* es demasiado pequeño, puede resultar ventajoso utilizar una aproximación en esta región. Las llamadas **funciones de pared** ignoran el flujo en la zona mencionada y calculan analíticamente una velocidad del fluido distinta de cero sobre la superficie (Ver Figura 2.20). Al emplear este tipo de funciones, los requisitos computacionales resultan significativamente menores. En este trabajo se emplea la

función de pared de Spalding [40]:

$$y^+ = u^+ + 0.1108 \left[\exp(0.4u^+) - 1 - 0.4u^+ - \frac{1}{2}(0.4u^+)^2 - \frac{1}{6}(0.4u^+)^3 \right]$$

$$y^+ = yu_w/\rho$$

$$u^+ = u/u_w$$

$$u_w = \sqrt{\tau_w/\rho}$$
(2.25)

en donde u es la componente de la velocidad en la dirección del flujo, u_w es la velocidad tangencial en la superficie e y es la distancia a la superficie.

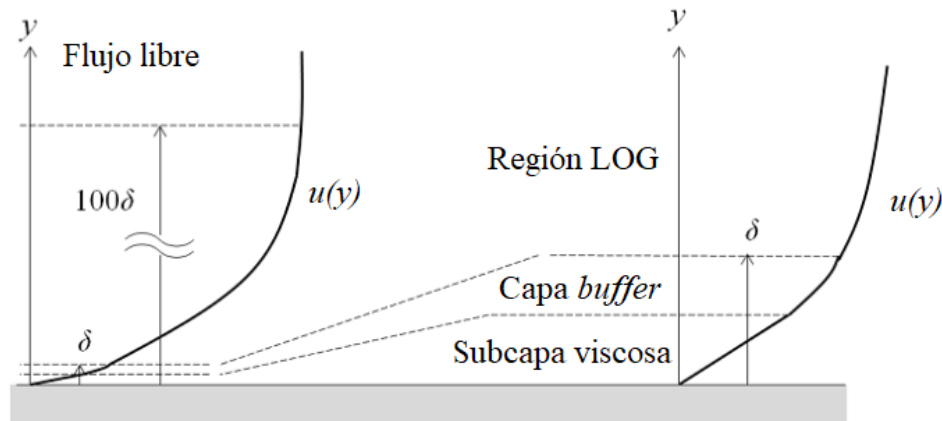


Figura 2.19: Esquema cualitativo de las zonas presentes en la capa próxima a una superficie plana en un régimen turbulento. Adaptada de COMSOL Blog [41]

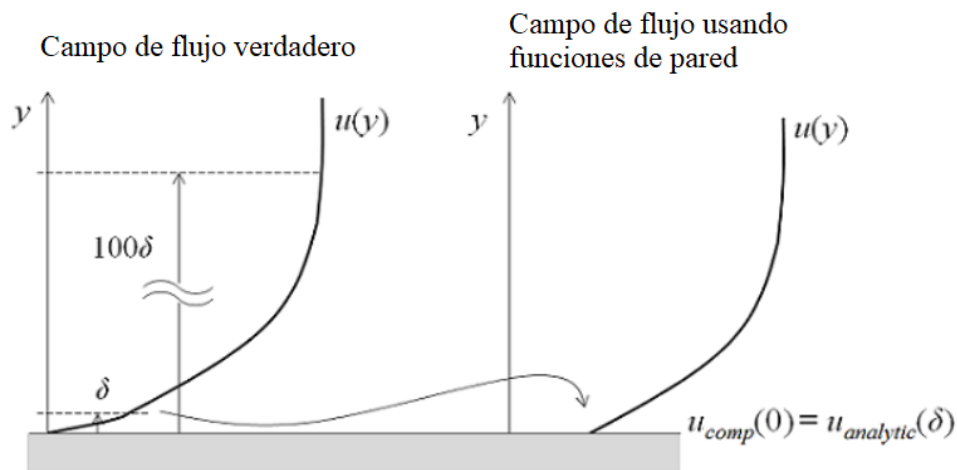


Figura 2.20: Esquema cualitativo de la aplicación de funciones de pared y su efecto sobre el campo de velocidad. Adaptada de COMSOL Blog [41]

Existen diferentes formas de resolver el sistema (2.19) - (2.20). Uno de los más comunes es utilizar el Método Mixto de Elementos Finitos que consiste en escoger funciones de interpolación distintas para las variables de velocidad y de presión. Lamentablemente, este tipo de enfoque se traduce en la necesidad de utilizar métodos directos de resolución

numérica que están condicionados por un gran costo de memoria computacional. Además, las soluciones en los entornos de grandes gradientes de velocidad y/o presión resultan en soluciones inestables con importantes oscilaciones [35, 42].

Una manera de mejorar los inconvenientes antes mencionados y poder utilizar iguales funciones de interpolación para la velocidad y la presión es aplicar términos que estabilicen las ecuaciones de N-S. En este trabajo se toma como referencia el trabajo propuesto por Oñate et al. [42] en el que se establece un balance de masas a partir del Cálculo Finito Incremental (FIC) tal que:

$$\varepsilon_v + \frac{h_i^2}{24} \frac{\partial^2 \varepsilon_v}{\partial x_i^2} = 0 \quad (2.26)$$

en donde h_i son longitudes características de un dominio rectangular en 2D (hexaédrico en 3D). Esto indica que mientras más pequeños sean los valores de h_i , más cerca se está de cumplir con la condición de incompresibilidad, que en el caso límite de $h_i = 0$ se devuelve la Ec. (2.11). Debido a que la condición de incompresibilidad ya no se cumple exactamente, se reescriben las componentes desviadoras del tensor de tensiones como:

$$\bar{\tau}_{ij} = 2\mu\bar{\varepsilon}_{ij} - \frac{2}{3}\mu\bar{\varepsilon}_v\delta_{ij} \quad (2.27)$$

$$\bar{\varepsilon}_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \bar{v}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{v}_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.28)$$

siendo $\bar{\varepsilon}_{ij}$ el tensor de deformaciones. Entonces, la Ec. (2.20) en estado estacionario es:

$$\rho\bar{v}_j \frac{\partial \bar{v}_j}{\partial x_j} - \frac{\partial}{\partial x_j} \left[(\mu + \mu_T) \left(\frac{\partial \bar{v}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{v}_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3}\mu\bar{\varepsilon}_v\delta_{ij} - \bar{p}\delta_{ij} \right] - \rho\bar{f}_i = 0 \quad (2.29)$$

En DIONISIO el esquema de elementos finitos se emplea para resolver las ecuaciones del problema mecánico y del calor en estado estacionario en cada paso de tiempo, que están en el orden de los días. Sin embargo, es conocido que cuando intervienen flujos turbulentos, la dependencia con el tiempo es necesaria para lograr buenas aproximaciones de las soluciones deseadas. Es por ello, que para tratar los casos con turbulencia y con el fin de beneficiarse del sistema ya incorporado al código, cada paso estacionario de tiempo (paso macro) se subdivide en pasos más pequeños. En cada subpaso, se resuelven las ecuaciones anteriores en estado estacionario, incorporando gradualmente, por medio de un factor menor o igual a 1.0, los efectos de la turbulencia y de los términos convectivos hasta obtener sus efectos completos hacia el final del paso de tiempo macro.

Un aspecto relevante de introducir parámetros de estabilización es poder determinar h_i en los elementos del dominio. En algunas formulaciones se toma estas longitudes características en las direcciones cartesianas, de las componentes del vector de velocidad o del gradiente de velocidad [42-44]. Aquí por simplicidad, se define h_i como la máxima longitud proyectada de los lados un elemento (\bar{l}_{ab}) en la dirección i (\hat{e}_i):

$$h_i = \text{máx}(\|\hat{e}_i \cdot \bar{l}_{ab}\|) \quad (2.30)$$

Empleando una discretización por elementos finitos del dominio y funciones de interpolación iguales para las variables v_i y p , se puede aproximar:

$$\bar{v}_i = \sum_{l=1}^{N_e} \psi_l V_i^l \quad \bar{p} = \sum_{l=1}^{N_e} \psi_l P^l \quad (2.31)$$

en donde ψ_l corresponde a las funciones de interpolación, N_e es la cantidad de nodos del elemento finito y V_i^l y P^l son los valores de las variables en los nodos del elemento.

Aplicando el método de elementos finitos al sistema (2.26)-(2.29), se obtiene el siguiente sistema matricial de ecuaciones para cada elemento del dominio [42-44]:

$$\begin{bmatrix} C_V I_d + \hat{K} + \hat{K}^{turb} & -Q \\ -Q^T + C_\gamma & -L \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \bar{V} \\ P \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} f \\ f_d \end{Bmatrix} \quad (2.32)$$

$$\hat{K} = \begin{bmatrix} \frac{4}{3} K_{11} + K_{22} + K_{33} & -\frac{2}{3} K_{12} + K_{21} & -\frac{2}{3} K_{13} + K_{31} \\ -\frac{2}{3} K_{21} + K_{12} & K_{11} + \frac{4}{3} K_{22} + K_{33} & -\frac{2}{3} K_{23} + K_{32} \\ -\frac{2}{3} K_{31} + K_{13} & -\frac{2}{3} K_{32} + K_{23} & K_{11} + K_{22} + \frac{4}{3} K_{33} \end{bmatrix}$$

$$\hat{K}^{turb} = \begin{bmatrix} 2K_{11}^t + K_{22}^t + K_{33}^t & K_{21}^t & K_{31}^t \\ K_{12}^t & K_{11}^t + 2K_{22}^t + K_{33}^t & K_{32}^t \\ K_{13}^t & K_{23}^t & K_{11}^t + K_{22}^t + 2K_{33}^t \end{bmatrix}$$

$$Q^T = \begin{bmatrix} Q_1^T & Q_2^T & Q_3^T \end{bmatrix} \quad C_\gamma = \begin{bmatrix} C_{\gamma_1} & C_{\gamma_2} & C_{\gamma_3} \end{bmatrix}$$

$$f = \begin{bmatrix} f_1 & f_2 & f_3 \end{bmatrix}$$

$$I_d = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

$$\begin{aligned} C_V^{lk} &= \int_{\Omega^e} \rho \psi_l \left(\bar{v}_j \frac{\partial \psi_k}{\partial x_j} \right) d\Omega^e & C_{\gamma_i} &= \int_{\Omega^e} \rho \gamma_i \frac{\partial \psi_l}{\partial x_i} \left(v_j \frac{\partial \psi_k}{\partial x_j} \right) d\Omega^e \\ K_{ij}^{lk} &= \int_{\Omega^e} \mu \frac{\partial \psi_l}{\partial x_i} \frac{\partial \psi_k}{\partial x_j} d\Omega^e & K_{ij}^{turb\ lk} &= \int_{\Omega^e} \mu_T \frac{\partial \psi_l}{\partial x_i} \frac{\partial \psi_k}{\partial x_j} d\Omega^e \\ Q_i^{lk} &= \int_{\Omega^e} \frac{\partial \psi_l}{\partial x_i} \psi_k d\Omega^e & Q_i^{Tlk} &= \int_{\Omega^e} \psi_i \frac{\partial \psi_k}{\partial x_i} d\Omega^e \\ L^{lk} &= \int_{\Omega^e} \gamma_i \frac{\partial \psi_l}{\partial x_i} \frac{\partial \psi_k}{\partial x_j} d\Omega^e & f_d^l &= \int_{\Omega^e} \rho \left(\gamma_j \frac{\partial \psi_j}{\partial x_j} f_j \right) d\Omega^e \\ f_i^l &= \int_{\Omega^e} \rho \psi_l f_i d\Omega^e + \oint_{\Gamma^e} \psi_l [\hat{n}_j (\bar{\sigma}_{ij} + \bar{\tau}_{ij}^T)] d\Gamma^e \end{aligned} \quad (2.33)$$

en donde k, l son índices sobre la cantidad de nodos de cada elemento, i, j indican las

direcciones 1, 2 y/o 3 (x,y,z, respectivamente). Además, siguiendo la forma en que Oñate et al. [42] obtiene γ_i en caso de flujos laminares, se puede expresar estos parámetros para los casos con turbulencia como sigue:

$$\gamma_i \approx \xi \frac{h_i}{16(\mu + \mu_T)} \quad (2.34)$$

en donde se incorporó un factor arbitrario $\xi < 1$ para lograr la convergencia del modelo en ciertos casos.

El sistema presentado anteriormente se resuelve mediante el método iterativo de los Gradientes Bi-Conjugados, cuyo algoritmo se emplea ampliamente en DIONISIO y su detalle puede encontrarse en Barret et al. [45]. Además, la no linealidad del problema implica un algoritmo de resolución iterativa hasta alcanzar la convergencia de la solución con algún criterio. En este trabajo, siendo la solución $\vec{U} = \{\vec{V}, \vec{P}\}$, se toma como criterio de convergencia:

$$\|\vec{U}^h - \vec{U}^{h-1}\| \leq \varepsilon_{err} \quad (2.35)$$

en donde ε_{err} es la tolerancia del problema no lineal, en general 10^{-2} en las simulaciones realizadas.

2.2.3. Evaluación del nuevo modelo

La formulación presentada previamente se programó en FORTRAN90 y se testeó de manera independiente a DIONISIO, pero siguiendo la misma lógica para luego incorporarla de forma modular. Las primeras pruebas de la resolución de las ecuaciones de N-S se realizaron en un dominio bidimensional frente a casos simples de estudio y bien conocidos, y luego se realizó un test para un canal entre placas. Para las propiedades del agua, se utilizaron las correlaciones implementadas en DIONISIO [2], excepto en dónde se indique otros valores:

$$\rho[\text{m}^3/\text{s}] = 1005.1643 - 0.228765 \cdot T_e - 2.3962255 \times 10^{-2} \cdot T_e^2 \quad (2.36)$$

$$\mu[\text{Pa.s}] = \frac{(151.65608 + 2.152773 \cdot T_e)9.8 \times 10^{-6}}{1 + 2.288828 \times 10^{-2} \cdot T_e + 8.870123 \times 10^{-4} \cdot T_e^2} \quad (2.37)$$

en donde T_e es la temperatura en $[\text{°C}]$.

Recipiente abierto a la atmósfera

En primer lugar se estudio el caso de un recipiente bidimensional abierto a la atmósfera de 1×1 [m] con agua en reposo a temperatura ambiente. Se utilizó un mallado de 20×20 elementos rectangulares de cuatro nodos (elementos lineales) y se impuso velocidad cero en las paredes laterales y en la base del recipiente. Además, la aceleración de la gravedad utilizada fue $f_z = g = 9.8065$ [m/s²].

La solución encontrada para este problema es esencialmente $\vec{V} = 0$, a menos por

algunas oscilaciones y una distribución hidrostática de la presión, verificando este principio básico. En la Figura 2.21 se puede observar la diferencia de presión con respecto a la atmosférica en todo el dominio del recipiente.

Un comentario respecto a γ_i y al factor ξ es relevante en esta sección. El principio elemental de la formulación presentada reside en que los valores absolutos de los elementos de la matriz \mathbf{L} sean lo suficientemente pequeños para que sean considerados como una perturbación en la ecuación de incompresibilidad. Dada la definición dada en (2.34), esto quiere decir que el tamaño de los elementos de la malla tienen una influencia directa. Para evitar tener una gran densidad de elementos que ralenticen el cálculo computacional de sobremanera, es que se elige un factor arbitrario $\xi < 1$. En diversas pruebas que se han realizado, se encontró que para valores entre 10^{-5} - 10^{-7} , para la malla aquí usada, se obtiene una buena representación de la solución. Para valores de $\xi > 10^{-5}$, si bien la solución de la presión es correcta, se obtienen valores máximos de velocidad de alrededor de 1 [m/s] en algunos nodos, mientras que para valores más pequeños, el campo de velocidad se asemeja más al campo de reposo (velocidad 0), pero aparecen inestabilidades en el campo de las presiones. Es por ello que en las simulaciones realizadas en este trabajo se utilizan valores de este factor en el rango mencionado, aunque varía dependiendo de la densidad de la malla.

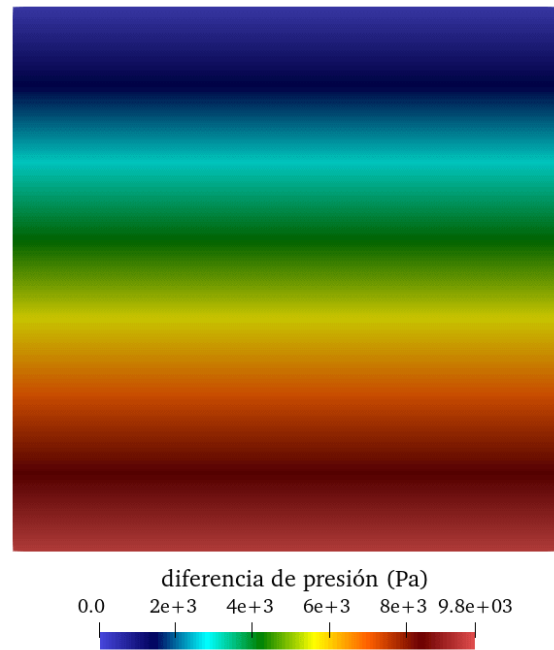


Figura 2.21: Diferencia de presión en el dominio del recipiente con agua en reposo

Driven Cavity Flow

Una vez finalizada la comprobación del caso básica de un recipiente con agua estanca, se procedió a analizar el problema denominado *Driven Cavity Flow*, que ha sido ampliamente utilizado como caso de referencia para validar técnicas y métodos de resolución de las ecuaciones de Navier-Stokes por más de medio siglo [46, 47]. En este trabajo se lo emplea para evaluar la formulación FEM de la resolución de las ecuaciones de N-S en estado estacionario sin modelo de turbulencia.

El problema consiste en un recipiente bidimensional de 1×1 [m] en el que la tapa o pared superior se mueve a una velocidad tangencial positiva de 1[m/s], en el resto de las paredes (base y laterales) se prescribe velocidad cero y se impone presión cero en un único nodo ubicado en la esquina inferior izquierda. Estas condiciones producen un flujo

caracterizado por un vórtice grande alrededor del centro del recipiente y vórtices más pequeños en las esquinas. Se ejecutaron diferentes casos variando el número de Reynolds entre 100 y 10000, considerando $\rho = 1000$ [kg/m³] y diferentes valores de viscosidad para alcanzar los valores deseados de Re .

El código se ejecutó utilizando una “historia de Re ” de modo que los valores iniciales de las variables del fluido para cada caso estaban dados por la solución del caso anterior y de este modo facilitar la convergencia del problema. Para poder obtener una mejor descripción del comportamiento del fluido en los bordes del recipiente, donde existen importantes gradientes de velocidad, se empleó una malla con elementos rectangulares con un espaciado logarítmico, como se puede observar en la Figura 2.22. En este caso, se empleó una malla de 150×150 elementos.

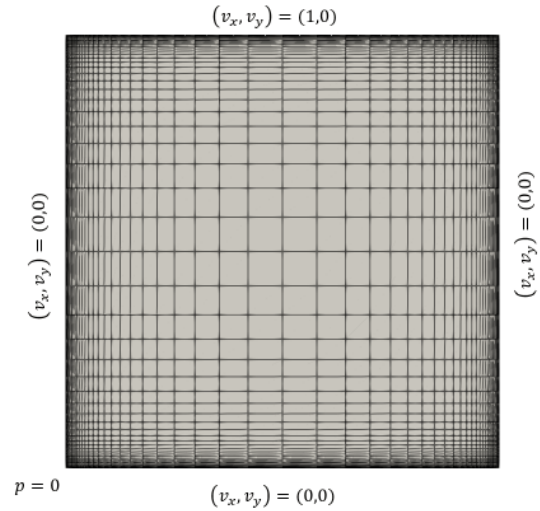


Figura 2.22: Mallado utilizado para el problema de *Driven Cavity Flow*

En la Figura 2.23 se muestra en a) el perfil de la componente y de la velocidad en función de la posición sobre una línea horizontal ubicada en el centro del recipiente ($y = 0.5$ [m]) y similarmente en b) la componente x de la velocidad (en abscisas) contra la posición sobre una línea vertical en $x = 0.5$ [m] para los diferentes casos estudiados. Además, se encuentran los indicados en diferentes puntos discretos la solución obtenida por Ghia et al. [46], observando, en términos generales, un buen acuerdo con las simulaciones realizadas en este trabajo. Se puede destacar que a mayor Re , la magnitud de la velocidad aumenta

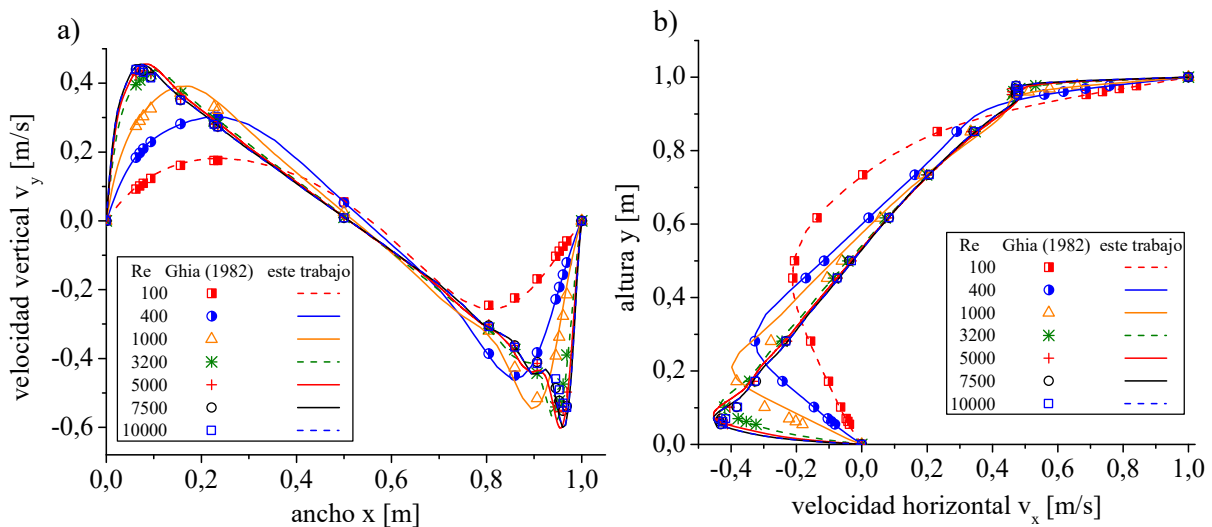


Figura 2.23: a) Velocidad vertical con respecto a las abscisas para $y = 0.5$ [m] y b) Velocidad horizontal con respecto a las ordenadas para $x = 0.5$ [m] en conjunto los valores obtenidos por [46].

y su máximo se aproxima más hacia las superficies sólidas.

En las Figuras 2.24 y 2.25 se pueden observar, para los distintos casos evaluados entre 100 y 10000 Reynolds, el perfil de velocidad sobre la superficie y las líneas de flujo correspondiente. Puede verse que para $Re = 100$ se genera un vórtice grande cerca del centro y los secundarios en las esquinas inferiores. A medida que aumenta Re , los vórtices secundarios aumentan su tamaño y se manifiestan nuevos en diferentes posiciones. Las soluciones encontradas presentan buen acuerdo con los resultados obtenidos en la literatura.

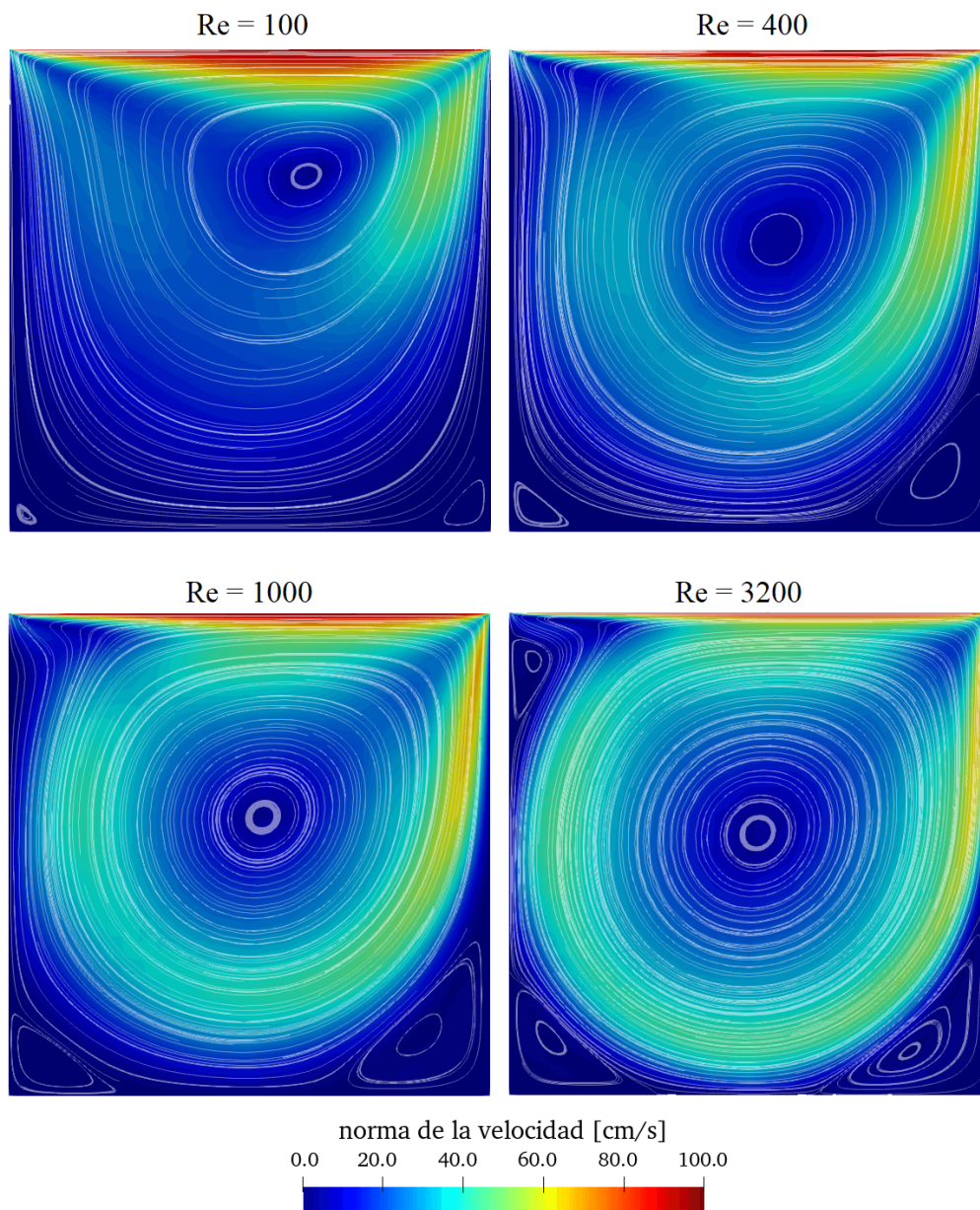


Figura 2.24: Magnitud del vector velocidad para diferentes valores de Re en el problema de *Driven Cavity Flow*.

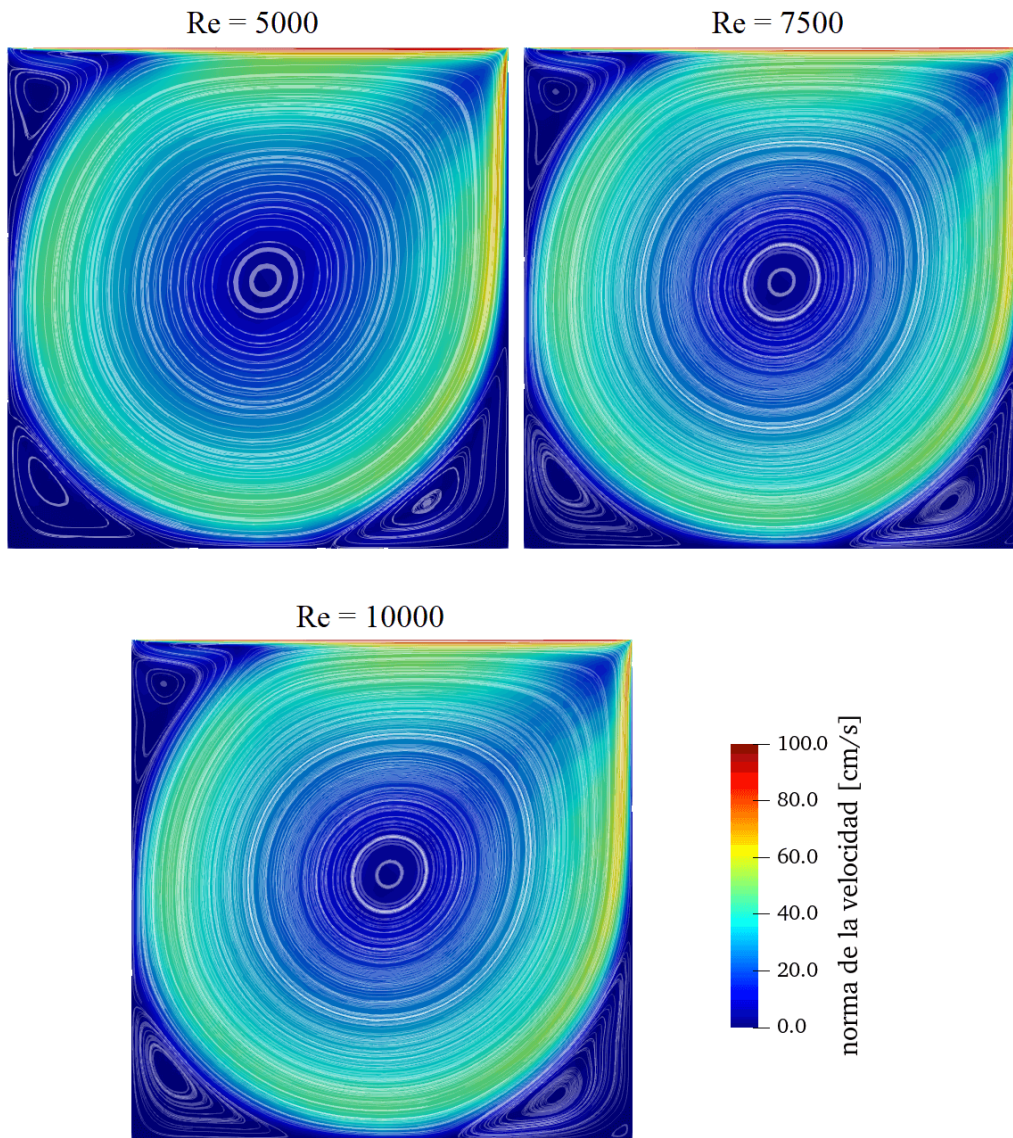


Figura 2.25: Magnitud del vector velocidad para diferentes valores de Re en el problema de *Driven Cavity Flow*.

Canal entre placas 2D

Finalmente, se procedió a evaluar el problema de un canal refrigerante vertical entre dos placas planas paralelas. Con el fin de evaluar el impacto de la incorporación de un modelo turbulento, el problema se evaluó imponiendo un régimen laminar y luego turbulento. Para ello se consideró un dominio rectangular de 2.35 [mm] de espesor y 0.615 [m] de largo, con una velocidad de entrada de 10 [m/s], un flujo completamente desarrollado a la salida y en las superficies sólidas se impuso una velocidad igual a cero para un caso laminar y una velocidad tangencial derivada de la función de pared, en el caso turbulento. En el espesor, el dominio fue discretizado de forma logarítmica para tener una mayor densidad de elementos próximos a la superficie y en la dirección vertical los elementos estuvieron equi espaciados. Además, las condiciones de este problema logran un número de Reynolds aproximado de 45000.

En la Figura 2.26 se observan los resultados obtenidos en este trabajo y su comparación con el software comercial COMSOL. En a) se muestra la componente vertical de la velocidad en función de la posición sobre una línea vertical en el centro del espesor. Se puede observar que para el caso laminar la velocidad crece monótonamente, mientras que en el caso turbulento la velocidad crece, hasta aprox. un sexto de la altura y luego se mantiene prácticamente constante. Los resultados alcanzados presentan un muy buen acuerdo con COMSOL en el caso laminar y en el caso turbulento la aproximación obtenida resultó adecuada con una diferencia menor al 3% con respecto al valor obtenido en COMSOL. Se debe tener en cuenta, que el modelo de turbulencia empleado en este trabajo corresponde a uno de los más sencillos que existe en la literatura, mientras que el probado en COMSOL corresponde la modelo $k-\omega$. En la figura b) se presenta el perfil de la velocidad en función de la posición sobre una línea horizontal ubicada en la mitad de la altura del canal. Similarmente, a lo indicado anteriormente, existe un acuerdo general entre los resultados obtenidos al comparar con COMSOL.

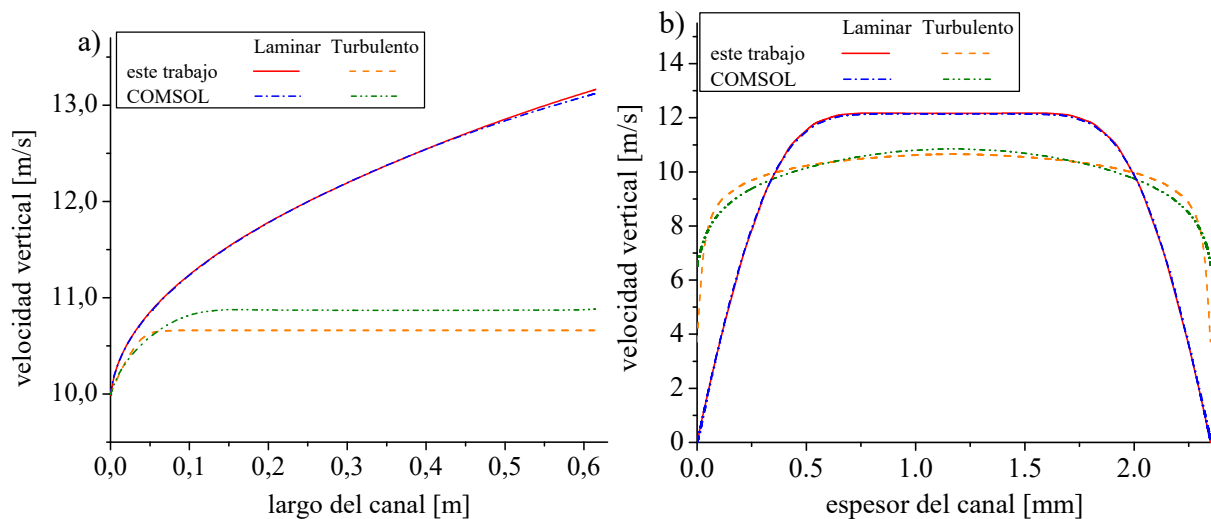


Figura 2.26: Perfil de la componente vertical de la velocidad a lo largo del canal en a) y a lo largo del espesor en b) para un caso laminar y turbulento. Se superponen los resultados obtenidos con el software comercial COMSOL.

Cómo pudo observarse en los casos de estudios hasta aquí expuesto la formulación FEM con estabilización de la Ec. de balance de masa para la resolución de las Ec. de N-S resulta en una buena aproximación del comportamiento del fluido bajo condiciones isotérmicas. Esto aún no incluye la resolución de la ecuación de la conservación de la energía que permitiría conocer, en conjunto al problema anterior, el perfil de temperatura que alcanza el fluido a medida que es calentado por las placas. Añadir la ecuación de balance energético al conjunto es una de las tareas en desarrollo en la sección Códigos y Modelos y parte de las tareas a futuro a realizar al momento de terminar esta tesis. Una vez que se halla implementado este último desarrollo, el código poseerá un modelo independiente para el fluido y otro para la estructura. El acople entre ambos modelos

será en forma explícita e iterativa, en cada paso de tiempo, resultando una representación mucho más realista que la que posee DIONISIO actualmente.

Referencias

- [1] L. S. Tong y J. Weisman. *Thermal Analysis of Pressurized Water Reactors*. American Nuclear Society, 1996.
- [2] A. Soba y A. Denis. “Simulation with DIONISIO 1.0 of thermal and mechanical pellet-cladding interaction in nuclear fuel rods”. *Journal of Nuclear Materials* 374.1-2 (2008), págs. 32-43. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.06.020.
- [3] A. Soba, A. Denis, L. Romero, E. Villarino y F. Sardella. “A high burnup model developed for the DIONISIO code”. *Journal of Nuclear Materials* 433 (2013), págs. 160-166. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2012.08.016.
- [4] A. Soba, M. Lemes, M. E. González, A. Denis y L. Romero. “Simulation of the behavior of nuclear fuel under high burnup conditions”. *Annals of Nuclear Energy* 70 (2014), págs. 147-156. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.03.004.
- [5] 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. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2015.06.008.
- [6] 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. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2014.09.048.
- [7] 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.
- [8] E. Goldberg, M. 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: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.06.005>.
- [9] N. E. Todreas y M. S. Kazimi. *Nuclear Systems I. Thermal Hydraulic Fundamentals and design*. Taylor & Francis, 1990.
- [10] Nuclear Power. *Nuclear Power for Everybody –What is Nuclear Power?* <https://www.nuclear-power.com/>, Último acceso el 30-12-2022.
- [11] H. Hu, C. Xu, Y. Zhao, K. J. Ziegler y J. N. Chung. “Boiling and quenching heat transfer advancement by nanoscale surface modification”. *Scientific Reports* 6117.7 (2017). DOI: <https://doi.org/10.1038/s41598-017-06050-0>.
- [12] X. Cheng y U. Müller. *Review on Critical Heat Flux in Water Cooled Reactors*. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 2003.
- [13] L. S. Tong. “Heat transfer in water-cooled nuclear reactors”. *Nuclear Engineering and Design* 6 (1967), págs. 301-324. DOI: [https://doi.org/10.1016/0029-5493\(67\)90111-2](https://doi.org/10.1016/0029-5493(67)90111-2).
- [14] A. Soba. “Simulación del comportamiento termomecánico de una barra combustible en operación”. Tesis doct. Universidad de Buenos Aires, 2007.
- [15] Pramuditya, S. *Standard PWR nuclear fuel assembly (17x17) technical specification*. <https://syeilendrapramuditya.wordpress.com/2009/04/14/standard-pwr-nuclear-fuel-assembly-17x17-technical-specification/>, Último acceso el 06-01-2022.
- [16] C. M. Allison et al. *SCDAP/RELAP5/MOD3.1 Code manual. Volume IV: MATPRO –A Library of materials properties for light-water-reactor accident analysis*. NUREG/CR-6150, 1993.

- [17] J. C. Almichi, V. H. Sanchez y U. Imke. “Extension and validation of the SubChanFlow code for the thermo-hydraulic analysis of MTR cores with plate-type fuel assemblies”. *Nuclear Engineering and Design* 379 (2021), pág. 111221. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.02.028.
- [18] A. Gómez Torres, V. Sánchez Espinoza, U. Imke y R. Macián Juan. “Pin Level Neutronic - Thermallyhydraulic Two-Way-Coupling Using DYN3D-SP3 and SubChanFlow”. *International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science and Engineering (M&C 2011)*. Rio de Janeiro, RJ, Brazil, 2011, pág. 20.
- [19] M. García et al. “Validation of Serpent-SUBCHANFLOW-TRANSURANUS pin-by-pin burnup calculations using experimental data from Pre-Konvoi PWR reactor”. *Nuclear Engineering and Design* 379 (2021), pág. 111173. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2021.111173.
- [20] U. Imke y V. H. Sanchez. “Validation of the Subchannel Code SUBCHANFLOW Using the NUPEC PWR Tests PSBT”. *Science and Technology of Nuclear Installations* 2012 (2012), pág. 12. DOI: 10.1155/2012/465059.
- [21] W. Jaeger, J. Perez Manes, U. Imke, J. Jimenez Escalante y V. H. Sanchez. “Validation and comparison of two-phase flow modeling capabilities of CFD, sub channel and system codes by means of post-test calculations of BFBT transient tests”. *Nuclear Engineering and Design* 263 (2013), págs. 313-326. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2013.06.002.
- [22] M. Calleja, U. Jimenez J.and Imke, V. H. Sanchez, R. Stieglitz, J. J. Herrero y R. Macián. “Implementation of hybrid simulation schemes in COBAYA3/SUBCHANFLOW coupled codes for the efficient direct prediction of local safety parameters”. *Annals of Nuclear Energy* 70 (2014), págs. 216-229. DOI: 10.1016/j.net.2021.04.023.
- [23] M. Daeubler, A. Ivanov, B. L. Sjenitzer, V. Sanchez, R. Stieglitz y R. Macián—Juan. “High-fidelity coupled Monte Carlo neutron transport and thermal-hydraulic simulations using Serpent2 - SubChanFlow”. *Annals of Nuclear Energy* 83 (2015), págs. 352-375. DOI: 10.1016/j.anucene.2015.03.040.
- [24] M. García et al. “Validation of Serpent-SubChanflow-TRANSURANUS pin-by-pin burnup calculations using experimental data from the Temelín II VVER-1000 reactor”. *Nuclear Engineering and Technology* 53 (2021), págs. 3133-3150. DOI: 10.1016/j.net.2021.04.023.
- [25] W. F. Lyon y J. Turnbull. *IFPE/US-PWR-16 X 16 Lead Test Assembly Extended Burnup Demonstration Program*. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2005.
- [26] K. J. Geelhood, W. G. Luscher, P. A. Raynaud e I. E. Porter. *FRAPCON-4.0: A Computer Code for the Calculation of Steady-State, Thermal-Mechanical Behavior of Oxide Fuel Rods for High Burnup*. Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, USA, 2015.
- [27] M. Menard. *Rapport d’Assurance Qualite Crayon FF06E2BV/G07/1067*. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 1998.
- [28] M. Menard. *Rapport d’Assurance Qualite Crayon FF0EFELX/H09/5007*. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 1998.
- [29] A. Soba y A. Denis. “PLACA/DPLACA: un código para la simulación del comportamiento de un combustible tipo PLACA monolítico/disperso”. *Revista Internacional de Métodos Numéricos para Cálculo y Diseño en Ingeniería* 23, 2 (2007).
- [30] A. R. Foster y R. L. Wright. *Basic Nuclear Engineering*. Allyn y Bacon, 1983.
- [31] Y. S. Kim, G. L. Hofman, N. A. Hanan y J. L. Snelgrove. “Prediction model for oxide thickness on aluminum alloy cladding during irradiation”. *International RERTR Meeting*. IAEA, 2003.

- [32] S. L. Hayes, M. K. Meyer, G. L. Hofman y J. L. Snelgrove. “U-Mo/Al dispersion fuel modelling”. *International RERTR Meeting*. IAEA, 2004.
- [33] V. Marelle, F. Huet y P. Lemoine. “Thermo-mechanical modelling of U-Mo fuels with MAIA”. *8th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management*. München, Germany: European Nuclear Society (ENS), 2004.
- [34] J. F. Wendt. *Computational Fluid Dynamics: An Introduction*. 3.^a ed. Springer, 2009.
- [35] J. N. Reddy y D. K. Gartling. *The finite element method in heat transfer and fluid dynamics*. CRC Press, 2010.
- [36] G. Houzeaux. “A Turbulent Model for the Solution of Two Dimensional Internal Flows by the Finite Element Method”. Master’s Thesis. Montréal, Québec, Canada: Concordia University, 2004.
- [37] R. Schiestel. *Modeling and Simulation of Turbulent Flows*. Wiley, 2008.
- [38] T. J. Chung. *Computational Fluid Dynamics*. Cambridge University Press, 2002.
- [39] D. C. Wilcox. *Turbulence Modeling for CFD*. DCW Industries, 2006.
- [40] Introduction to CFD. *Wall functions*. <https://cfd.blogs.upv.es/turbulence/wall-functions/>, Último acceso el 19-01-2022.
- [41] COMSOL Blog. *Which Turbulence Model Should I Choose for My CFD Application*. <https://www.comsol.com/blogs/which-turbulence-model-should-choose-cfd-application/>, Último acceso el 19-01-2022.
- [42] E. Oñate, S. R. Idelsohn y C. A. Felippa. “Consistent pressure Laplacian stabilization for incompressible continua via higher-order finite calculus”. *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 87 (2010), págs. 171-195. DOI: 10.1002/nme.3021.
- [43] J. Cotela-Dalmau, R. Rossi y E. Oñate. “A FIC-based stabilized finite element formulation for turbulent flows”. *Computational Methods in Applied Mechanics and Engineering* (2017), págs. 607-631. DOI: 10.1016/j.cma.2016.11.020.
- [44] E. Oñate, A. Valls y G. J. “FIC/FEM formulation with matrix stabilization terms for incompressible flows at low and high Reynolds numbers”. *Computational Mechanics* 38 (2006), págs. 440-455. DOI: 10.1007/s00466-006-0060-y.
- [45] R. Barret, M. Berry, T. F. Chan, J. Demmel, J. M. Donate, J. Dongarra, V. Eijkhout, R. Pozo, C. Romine y H. Van der Vorst. *Templates for the solution of linear systems: Building locks for iterative methods*. Society for Industrial and Applied Mathematics, 1994.
- [46] U. Ghia, K. Ghia y C. T. Shin. “High-Re Solutions for Incompressible Flow Using the Navier-Stokes Equations and a Multigrid Method”. *Journal of Computational Physics* 48 (1982), págs. 387-411. DOI: 10.1016/0021-9991(82)90058-4.
- [47] T. A. AbdelMigid, K. M. Saqr, M. A. Kotb y A. A. Aboelfarag. “Revisiting the lid-driven cavity flow problem: Review and new steady state benchmarking results using GPU accelerated code”. *Alexandria Engineering Journal* 56 (2017), págs. 123-135. DOI: 10.1016/j.aej.2016.09.013.

3. Modelos para vainas combustibles

Las propiedades mecánicas de los materiales que constituyen las vainas combustibles y los elementos estructurales deben ser tales que puedan garantizar la integridad física y la economía de los diferentes tipos de reactores. En particular, las vainas constituyen la primera barrera frente a los productos de fisión, por lo que su correcto funcionamiento es un factor crítico y debe garantizarse bajo toda circunstancia [1].

Las aleaciones de zirconio son los materiales que más se utilizan en reactores nucleares, debido a su buen comportamiento en condiciones de irradiación: baja sección de captura de neutrones térmicos, buenas propiedades mecánicas y resistencia a la corrosión por agua. Existen diversos efectos que pueden resultar perjudiciales para la vida útil de una aleación de zirconio bajo condiciones de irradiación. Por un lado, se puede mencionar el proceso de corrosión que se produce cuando el zirconio reacciona de manera activa cuando entra en contacto con el agua refrigerante y se genera una capa de zirconia u óxido de zirconio (ZrO_2). El crecimiento de esta capa de óxido, que es un fenómeno complejo que se ve acelerado por irradiación, disminuye la capacidad de extracción de calor por el refrigerante debido a su baja conductividad térmica, lo que produce un aumento en la temperatura del combustible acelerando todos los efectos térmicamente activados que tienen lugar en el conjunto pastilla-vaina. Asociado al crecimiento de óxido se tiene la captura de hidrógeno producto de la reacción de reducción del agua. Parte del hidrógeno que se produce se incorpora a la vaina a través de la capa de óxido, pudiendo formar hidruros que fragilizan al material a bajas temperaturas. Por otro lado, estas aleaciones sufren deformaciones al ser sometidas a un campo de neutrones denominado crecimiento inducido por irradiación. Este crecimiento en aleaciones de Zr es un fenómeno que ocurre sin fuerzas externas y debe ser tenido en cuenta en el diseño del núcleo para mantener la integridad física del reactor ya que puede provocar problemas de estancamiento mecánico o fracturas de los componentes [1, 2].

Debido a estos fenómenos y otros en lo que no entraremos en detalles (*creep* por irradiación, corrosión bajo tensión, etc), para alcanzar simulaciones realistas del comportamiento de un combustible resulta importante contar con modelos para predecir los cambios dimensionales sobre la base de las condiciones de operación y las propiedades del material [3].

3.1. Modelo de crecimiento por irradiación en vainas de aleaciones de zirconio

El crecimiento inducido por irradiación, o simplemente crecimiento por irradiación, en aleaciones de zirconio (Zr), particularmente en Zircaloy-2, Zircaloy-4 y Zr-2.5%Nb que son comúnmente usadas en la industria nuclear, depende de la temperatura, de la historia térmica y mecánica a la cuál el material fue sometido previamente, del tamaño promedio de grano y de la textura cristalográfica del Zr [2, 5]. Para temperaturas del *cladding* en condiciones normales de operación de un reactor, menores que 1137 [K], las aleaciones de zirconio presentan una fase α -Zr con estructura cristalina hexagonal compacta (HCP - *Hexagonal Closed Packed structure*) que se caracteriza por una anisotropía natural y un bajo número de sistemas de deslizamientos. Luego del proceso de fabricación por deformación plástica de vainas combustibles, como el proceso *cold-pilger*, se observa que los dominios microscópicos presentan, con cierto grado, el eje $\langle c \rangle$ preferentemente orientados en la dirección radial [6]. Estas modificaciones en la textura cristalina que se producen en los procesos de deformación se pueden cuantificar mediante los factores de Kearns, que representan las fracciones en volumen de los cristales con polos basales proyectados en cada una de las tres direcciones principales de un componente: axial, radial y tangencial (f_{zz} , f_{rr} , $f_{\theta\theta}$, respectivamente). Los factores de Kearns en direcciones ortogonales satisfacen que [2, 3, 6]:

$$f_{zz} + f_{rr} + f_{\theta\theta} = 1 \quad (3.1)$$

Para texturas cristalinas aleatorias se supone que se cumple que $f_{zz} = f_{rr} = f_{\theta\theta} = 1/3$.

Además, se ha determinado experimentalmente que la evolución de los defectos microestructurales en la estructura HCP durante la irradiación genera expansiones en la dirección $\langle a \rangle$ y contracciones en la dirección $\langle c \rangle$. Estos cambios dimensionales, que en ausencia de fuerzas externas se producen a volumen constante, generan un aumento de la superficie del plano basal mientras que disminuye la altura de las caras prismáticas [7, 8].

Los modelos más utilizados para cuantificar el crecimiento por irradiación se basan en leyes empíricas simples, generalmente en función de la fluencia de neutrones rápidos,

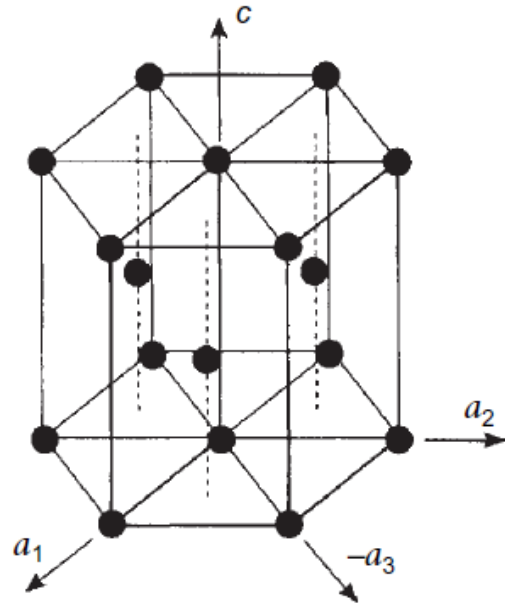


Figura 3.1: Arreglo de átomos para una estructura HCP como en el caso de α -Zr [4]

obtenidas a partir de la parametrización e interpolación de datos experimentales. En general, estos modelos incluyen la dependencia con algunos de los parámetros mencionados anteriormente: el factor de textura axial (f_{zz}), la fracción o porcentaje de trabajado en frío (CW) y la temperatura (T) [5, 7, 9]. Sin embargo, debido a que estos modelos se parametrizan usando un conjunto acotado de datos experimentales, su validez queda limitada a las condiciones de dichos experimentos. Actualmente, el código de combustibles DIONISIO contiene dos modelos de este estilo para el crecimiento por irradiación en vainas de Zircaloy [10].

En el denominado “modelo 1”, tomado de Marino et al. [9], se proporciona una relación para las tres direcciones principales del material tal que:

$$\dot{\epsilon}_{zz} = 4.942 \times 10^{-24} \left[\frac{\text{m}^2\text{s}}{\text{días} \cdot \text{n}} \right] \dot{\Phi}t \quad (3.2)$$

$$\dot{\epsilon}_{rr} = -0.941 \cdot \dot{\epsilon}_{zz} \quad (3.3)$$

$$\dot{\epsilon}_{\theta\theta} = -0.059 \cdot \dot{\epsilon}_{zz} \quad (3.4)$$

en donde $\dot{\epsilon}_{zz}$, $\dot{\epsilon}_{rr}$ y $\dot{\epsilon}_{\theta\theta}$ corresponden a las tasas de deformación en las direcciones axial, radial y tangencial, respectivamente, $\dot{\Phi}$ [n/m²s] es el flujo de neutrones rápidos (energía >1 MeV) y t es el tiempo en días. Se puede observar que en esta ley la deformación es proporcional a la fluencia ($\dot{\Phi}t$) y que un determinado alargamiento axial de la vaina se corresponde con una reducción del espesor de tal manera de mantener el volumen constante.

Por otro lado, el “modelo 2” [7] propone una descripción para calcular el alargamiento fraccional de tubos de Zircaloy que depende de la temperatura absoluta (T), la historia de deformación en frío y la textura axial (f_{zz}):

$$\frac{\Delta L}{L} = A \left[\exp \left(\frac{240.8}{T} \right) \right] \left(\dot{\Phi}t \right)^{1/2} (1 - 3.0 \cdot f_{zz}) (1 + 2.0 \cdot CW) \quad (3.5)$$

en donde A es una constante que toma un valor de 1.407×10^{-16} [n/m²]^{1/2}, t es el tiempo en segundos y CW es la fracción de trabajado en frío del tubo. Esta ley se adoptó en DIONISIO para vainas combustibles y para obtener la tasa de deformación axial se toma la derivada temporal de la Ec. (3.5).

Para evaluar el comportamiento de los modelos descritos previamente, se utilizó el código DIONISIO para simular la deformación axial de muestras de Zircaloy-2 irradiadas a 353 [K] y 553 [K] en condiciones de trabajado en frío y de recocido hasta fluencias entre 8.77×10^{25} a 17.23×10^{25} [n/m²]. El factor de textura axial informado experimentalmente fue de 0.10 y la fracción de trabajado en frío fue de 0.25 [11, 12]. Para el caso de las muestras recocidas sin deformación plástica previa se utilizó $CW = 0.0$. En la Figura 3.2 se presenta la deformación axial calculada con los dos modelos y su comparación con los resultados experimentales. Dado que el **modelo 1** sólo depende linealmente de

la fluencia, sus resultados no pueden aportar diferencias para muestras ensayadas en diferentes condiciones de deformación plástica y/o temperatura. En cuanto al **modelo 2**, aunque este incluye una dependencia con la temperatura y el trabajado en frío, los valores obtenidos en los cálculos numéricos muestran diferencias notables al comparar con las observaciones experimentales. Estas limitaciones, hace evidente la necesidad de refinar el cálculo utilizado para el crecimiento por irradiación dentro del código DIONISIO, con el fin de alcanzar resultados más realistas en un amplio rango de condiciones.

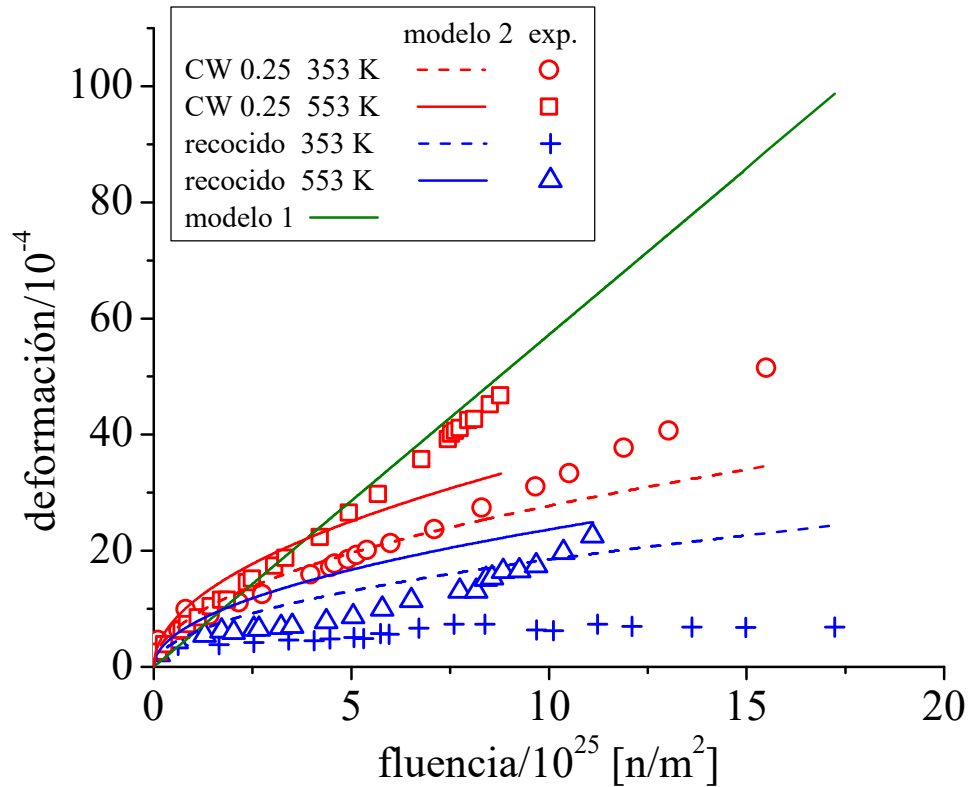


Figura 3.2: Simulación de la deformación axial para muestras de Zircaloy-2 irradiadas en diferentes condiciones utilizando los modelos de DIONISIO y su comparación con los datos experimentales Rogerson [11, 12]

Los modelos más complejos disponibles en la literatura muestran un mejor rendimiento que los expuestos anteriormente. Estos modelos están basados en la migración de defectos puntuales, considerando diferentes fuentes y sumideros microestructurales [13-17]. Sin embargo, a pesar de las mejoras incorporadas en sus formulaciones, se pueden reconocer algunas limitaciones. Los defectos microestructurales en el modelo de Dollins [14] incluyen dislocaciones de borde, lazos de dislocación, bordes de grano y las denominadas zonas de Seeger (*depleted zones*), es decir, regiones de la red cristalina con menor densidad de átomos luego de interactuar con los neutrones rápidos. Para obtener una buena concordancia entre los valores obtenidos con su modelo y las medidas experimentales, este autor debe suponer que una cuarta parte de estas zonas son huecos (*voids*) y las restantes colapsan en lazos de dislocaciones de vacancias, lo cuál de acuerdo a Fainstein-Pedraza et al. [15] carece de fundamentos teóricos sólidos. Estos autores mencionados desarrollaron un mo-

delo, para calcular el crecimiento por irradiación de aleaciones policristalinas de zirconio, basado en la difusión de defectos puntuales a través de la red que involucra diferentes sumideros. Aunque en general, los resultados logrados con este modelo concuerdan con los datos experimentales, sus predicciones están subestimadas para las muestras con trabajado en frío y no explica el fenómeno de crecimiento en las muestras sometidas previamente a tratamientos térmicos de recocido. Posteriormente, Savino y Laciana [17] toma como base el modelo de Fainstein-Pedraza et al. [15] e incorpora el concepto de trampas de impurezas en sus consideraciones. A pesar del efecto de las trampas, el desempeño de este modelo fue insatisfactorio para altas temperaturas de irradiación en muestras previamente recocidas. Más recientemente, un modelo basado en *Cluster Dynamics* mostró mejores resultados al considerar la diferencia de anisotropía en la difusión de defectos y los lazos de dislocaciones de vacancias en el plano basal, entre otros Christien y Barbu [13].

Partiendo de modelos previamente publicados en la literatura [13-17] e incluyendo algunas consideraciones propias, a continuación, se presenta un modelo desarrollado en este trabajo para predecir el crecimiento por irradiación en aleaciones base zirconio, tanto en condiciones de deformación plástica en frío como simplemente recocidas.

3.1.1. Descripción del nuevo modelo de crecimiento inducido por irradiación para el código DIONISIO

Cuando las aleaciones base zirconio son introducidas en un flujo de neutrones rápidos, las interacciones elásticas entre los neutrones y los átomos de la red, hacen que estos últimos salgan expulsados de su posiciones normales de equilibrio, transfiriéndoles energía para que estos átomos expulsen de su posición a otros hasta disipar la energía. Estas colisiones sucesivas, denominadas cascadas de daño o desplazamientos en cascada, generan pares de Frenkel, es decir vacancias e intersticiales en igual proporción [3, 18]. En una primera aproximación, se considera que solamente los átomos de Zr (y sus defectos) pueden participar en los procesos de irradiación y difusión, despreciando los posibles efectos que pueden tener los otros elementos de aleación presentes. Entonces, para evaluar la tasa de producción de pares de Frenkel (\dot{K}) se emplea la propuesta de Sadaoka y Fuse [18]:

$$\dot{K} = \Psi \times \dot{\Phi} \quad (3.6)$$

en donde $\Psi = 2.3 \times 10^{-25} \text{ [m}^2\text{]}$ es la sección eficaz de daño del Zr y $\dot{\Phi} \text{ [n/m}^2 \text{ s]}$ es el flujo de neutrones rápidos.

Una vez creados los defectos puntuales durante las colisiones elásticas, estos tienen la posibilidad de escapar de las zonas de daño y migrar libremente a través de la red cristalina. Para poder migrar, la red que rodea a estos defectos debe sufrir una cierta distorsión momentánea que requiere un determinado valor mínimo de energía. Esto, se puede modelar por medio de la ecuación de Arrhenius para los coeficientes de difusión de

vacancias e intersticiales tal que:

$$D_{v,i} = D_{0(v,i)} \exp\left(\frac{-E_{v,i}^m}{k_b T}\right) \quad (3.7)$$

en donde los subíndices “*v*” e “*i*” indican vacancias e intersticiales, respectivamente, $D_{0(v,i)}$ es la constante pre-exponencial, $E_{v,i}^m$ corresponde a la energía de migración del defecto involucrado, $k_b = 8.61733 \times 10^{-5}$ [eV/K] es la constante de Boltzmann y T es la temperatura absoluta.

Durante la migración de defectos puntuales, si las vacancias y los intersticiales se encuentran lo suficientemente cerca, a una distancia de unos pocos parámetros de red, estos pueden recombinarse “sanando” localmente la red. La tasa de recombinación entre vacancias e intersticiales está dada por [19, 20]:

$$Re_{vi} = \alpha (D_i + D_v) C_v C_i \quad (3.8)$$

en donde C_v y C_i son las concentraciones adimensionales (fraccional) de vacancias e intersticiales, respectivamente, $\alpha = 4\pi r_{vi}/\Omega$ es el parámetro de recombinación, r_{vi} es la distancia para la cual los defectos pueden recombinarse, $\Omega = \sqrt{3}a^3c/4$ es el volumen atómico del Zr y “*a*” y “*c*” son los parámetros de red del Zr. El valor del parámetro r_{vi} varía dependiendo del autor consultado. A partir de lo expuesto por Wolfer y Si-Ahmed [20], en este trabajo se supone que la distancia de recombinación es igual a la medida del parámetro de red a para el Zr.

Durante la producción y migración de defectos, además de la recombinación, puede ocurrir la formación de pequeños *clusters* de vacancias e intersticiales. Para minimizar la energía del cristal, estos *clusters* pueden colapsar en lazos de dislocaciones del tipo $\langle a \rangle$ y $\langle c \rangle$, e incluso los *clusters* de vacancias pueden generar pequeños huecos o *voids* en la red. Sin embargo, la formación y estabilidad de los *voids* parecen estar relacionadas con la presencia de gases en solución en el metal y en este trabajo no son considerados [1]. Los lazos tipo $\langle a \rangle$ pueden estar constituidos por intersticiales o vacancias y están presentes en una alta densidad, entre 5×10^{21} y 5×10^{22} [m⁻³]. La proporción entre los lazos de vacancias e intersticiales $\langle a \rangle$ depende de la temperatura y por debajo de 573 [K] la mayoría de estos lazos corresponden a lazos de dislocaciones de intersticiales. Para fluencias por encima de 5×10^{25} [n/m²] existe evidencia de lazos de dislocaciones tipo $\langle c \rangle$ y de acuerdo a lo expuesto por Onimus y Béchade [21], estos corresponden a lazos de vacancias. Para simplificar los cálculos y reducir el número de parámetros requeridos por el modelo, se supone que las dislocaciones $\langle a \rangle$ corresponden únicamente a lazos de intersticiales y no se considera la componente $\langle c \rangle$, aun cuando esta última consideración puede no representar con exactitud el problema físico, especialmente a altas temperaturas y fluencias. Además, se considera que los lazos nuclean con un radio inicial $r_{i0} = 10^{-9}$ [m] y que su tamaño puede evolucionar dependiendo del intercambio neto de defectos

puntuales que tengan con la red cristalina, como se describirá luego en esta sección.

Además de los procesos descritos previamente, las vacancias e intersticiales pueden migrar hacia sumideros presentes en la microestructura como, por ejemplo, bordes de grano, dislocaciones de borde y lazos. En particular, los campos de tensiones de tracción y compresión que se generan alrededor de una dislocación pueden interactuar con los campos de tensiones inducidos en la red cristalina por los defectos puntuales. Cuando los defectos puntuales se encuentran dentro del radio de influencia de una dislocación, las vacancias son atraídas por el campo compresivo mientras que los intersticiales por el campo de tracción de la dislocación [4]. La interacción elástica entre una dislocación y un intersticial es mayor que con una vacancia debido a que los intersticiales producen una mayor distorsión en la red y por lo tanto su campo de tensión presenta un mayor alcance [22]. En el modelo propuesto, este efecto se tiene en cuenta por medio de los factores de sesgo descritos a continuación [14]:

$$Z_v = \frac{2\pi}{\ln(r_{md}/3b)} \quad (3.9)$$

$$Z_i = \frac{2\pi}{\ln(r_{md}/[3b + \Delta R])} \quad (3.10)$$

$$Z_{lv} = \frac{2\pi}{\ln(8r_l/3b)} \quad (3.11)$$

$$Z_{li} = \frac{2\pi}{\ln(8r_l/[3b + \Delta R])} \quad (3.12)$$

en donde Z_v y Z_i corresponden a los factores para dislocaciones de borde, Z_{lv} y Z_{li} son los factores para los lazos de dislocaciones, r_{md} es la mitad de la distancia promedio entre dos dislocaciones, r_l es el radio de un lazo de dislocación y $b = 3.232 \times 10^{-10}$ [m] es el vector de Burgers de una dislocación o lazo de dislocación. El núcleo de una dislocación se considera igual a $3b$ y el término ΔR da cuenta de la interacción adicional del campo elástico de una dislocación con un intersticial con respecto a una vacancia, tal que:

$$\Delta R = \frac{0.014ba^3\mu}{kT} \quad (3.13)$$

en donde $k = 1.3806 \times 10^{-23}$ [J/K] y μ es el módulo de corte del material.

La mitad de la distancia promedio entre dislocaciones puede aproximarse con [23]:

$$r_{md} \cong (\pi\rho_t)^{-1/2} \quad (3.14)$$

$$\rho_t = \rho + \rho_l \quad (3.15)$$

en donde ρ_t , ρ y ρ_l son las densidades de dislocaciones total, de borde y de lazos, respectivamente.

De acuerdo a Fainstein-Pedraza et al. [15] la densidad de lazos de dislocaciones se

puede calcular a partir de la concentración de lazos N_l tal que:

$$\rho_l = 2\pi r_l N_l \quad (3.16)$$

Con el fin de describir el crecimiento por irradiación es necesario conocer cómo evoluciona la concentración de defectos en el material. Para realizar esto, se resuelve las ecuaciones de difusión de defectos puntuales en un grano esférico aislado del material incorporando las diferentes fuentes y sumideros mencionados previamente. Dentro de este modelo, se supone que las concentraciones de vacancias e intersticiales varían con el tiempo y son espacialmente homogéneas, es decir que no varían dentro de un grano para un determinado instante. La variación espacial, se consigue al resolver el modelo en cada elemento finito en el que se subdivide el dominio de la vaina en DIONISIO. A partir de modelos previos [8, 14, 15] y las consideraciones descritas con anterioridad se determina que:

$$\frac{dC_v}{dt} = \dot{K} - Re_{vi} - (Z_v \rho D_v + K_{BGv} D_v) (C_v - C_v^{eq}) - Z_{lv} \rho_l D_v (C_v - C_v^{eq} f_{el}) \quad (3.17)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = \dot{K} - \xi - Re_{vi} - K_i D_i C_i \quad (3.18)$$

en donde \dot{K} es la tasa de producción de pares de Frenkel durante la irradiación con neutrones rápidos dada por la Ec. (3.6), Re_{vi} es la tasa de recombinación de defectos puntuales dada por la Ec. (3.8), K_i es la fuerza de sumidero total para intersticiales, K_{BGv} es la fuerza de sumidero de bordes de grano para vacancias, C_v^{eq} es la concentración de vacancias en equilibrio termodinámico, ξ es la tasa de intersticiales que escapan de las zonas de daño para formar los núcleos de lazos de dislocaciones y f_{el} es un parámetro geométrico que depende de las constantes elásticas del material y el tamaño de los lazos de dislocaciones que mide como éstas propiedades afectan a la concentración de vacancias en equilibrio termodinámico alrededor de un determinado lazo de dislocación. Según Fainstein-Pedraza et al. [15], estos parámetros se pueden obtener con:

$$C_v^{eq} = \exp\left(\frac{-1.2 \text{ [eV]}}{k_b T}\right) \quad (3.19)$$

$$f_{el} = \exp\left(-\frac{\frac{-\mu b^4}{4\pi(1-\nu)} \ln\left(\frac{r_l + b}{b}\right)}{(b + r_l) kT}\right) \quad (3.20)$$

$$\xi = \frac{dN_l}{dt} \pi r_{l0}^2 \quad (3.21)$$

en donde ν es el coeficiente de Poisson.

De acuerdo con Willaime [24], la energía de formación de un auto-intersticial en una red HCP-Zr es aproximadamente 3.0 [eV], por lo que la concentración en equilibrio ter-

modinámico resulta despreciable frente a la concentración inducida por irradiación y este parámetro no se incorporó en el modelo.

Fainstein-Pedraza et al. [15] propusieron en su modelo una ley para calcular la evolución temporal de la concentración de lazos de dislocaciones que depende de la tasa de producción de pares de Frenkel durante la irradiación del material, mientras que Dollins [14] propuso una dependencia con la temperatura. En este trabajo se combinaron los efectos de la temperatura y de la irradiación utilizando la siguiente expresión:

$$N_l = \frac{N_0}{1 + F} \log_{10} (51\dot{K}t + 1) \quad (3.22)$$

$$F = \frac{7.2 \times 10^{18}}{\exp\left(\frac{27660}{T}\right)} \quad (3.23)$$

en donde el factor $N_0 = 3 \times 10^{22}$ [m³].

Para las fuerzas de sumideros para bordes de grano y total para vacancias (v) e intersticiales (i) se adoptaron las siguientes expresiones de acuerdo a Fainstein-Pedraza et al. [15]:

$$K_{BG(v,i)} = \frac{6}{d_g} \left(Z_{v,i}\rho + Z_{l(v,i)}\rho_l \right)^{1/2} \quad (3.24)$$

$$K_{(v,i)} = Z_{(v,i)}\rho + Z_{l(v,i)}\rho_l + K_{BG(v,i)} \quad (3.25)$$

Una vez nucleados los lazos de dislocaciones, estos pueden alterar sus dimensiones debido al flujo neto de defectos puntuales que se establece entre los lazos y la red cristalina. Los lazos de dislocación se expanden debido a la captura de intersticiales y disminuyen su tamaño al capturar vacancias y al liberar intersticiales. Entonces, la variación temporal del tamaño de los lazos está dada por [15]:

$$\frac{dr_l}{dt} = \frac{1}{b} [Z_{li}D_iC_i - Z_{lv}D_v(C_v - C_v^{eq}f_{el})] + \frac{\xi}{\rho_l} \left(1 - \frac{r_l^2}{r_{l0}^2} \right) \quad (3.26)$$

Finalmente, la tasa de deformación total, para una determinada dirección j , que el material sufre por el crecimiento por irradiación presenta tres contribuciones: por trepamiento de dislocaciones ($\dot{\epsilon}_d$), por cambio de concentración y tamaño de los lazos de dislocación ($\dot{\epsilon}_l$) y por recombinación de defectos en bordes de grano ($\dot{\epsilon}_{BG}$). Estas contribuciones y el efecto total se calculan con:

$$\dot{\epsilon}_d = \frac{\rho}{2} [Z_iD_iC_i - Z_vD_v(C_v - C_v^{eq})] \quad (3.27)$$

$$\dot{\epsilon}_l = 2\pi b N_l r_l \frac{dr_l}{dt} \quad (3.28)$$

$$\dot{\epsilon}_{BG} = \frac{1}{6} [K_{BGi}D_iC_i - K_{BGv}D_v(C_v - C_v^{eq})] \quad (3.29)$$

$$\dot{\epsilon}_{tot_j} = (1 - 3f_j) \times (\dot{\epsilon}_d + \dot{\epsilon}_l + \dot{\epsilon}_{BG}) \quad (3.30)$$

en donde f_j es el factor de Kearns para la dirección j considerada.

Algunos de los parámetros más importantes usados en el modelo se encuentran en la Tabla 3.1. Los valores de energías de migración para vacancias e intersticiales fueron obtenidos a partir de un ajuste realizado sobre un conjunto pequeño de datos experimentales para muestras de Zircaloy-2 irradiadas a 573 [K] [11]. Estos valores se utilizaron en todas las simulaciones realizadas excepto en donde se indican otros.

Tabla 3.1: Parámetros principales utilizados en el modelo

símbolo	definición	unidad	valor	ref.
a	parámetro de red basal de α -Zr	m	3.232×10^{-10}	[25]
c	parámetro de red de α -Zr	m	5.147×10^{-10}	[25]
D_{0_v}	coeficiente pre-exponencial para la difusión de vacancias en Zr	m^2/s	1.0×10^{-6}	[14]
D_{0_i}	coeficiente pre-exponencial para la difusión de intersticiales en Zr	m^2/s	7.8×10^{-8}	[14]
E_v^m	energía de migración de vacancias en Zr	eV	1.1	este trabajo
E_i^m	energía de migración de intersticiales en Zr	eV	0.3	este trabajo
r_{l0}	radio inicial de los lazos de intersticiales	m	10^{-9}	este trabajo
r_{vi}	distancia de recombinación entre vacancias e intersticiales	m	a	este trabajo
Ψ	sección eficaz de daño del Zr	m^2	2.3×10^{-25}	[18]

Las propiedades mecánicas requeridas por el modelo son el coeficiente de Poisson (ν) y el módulo de corte (μ). A partir de datos experimentales de estas propiedades en función de la temperatura para distintas aleaciones de zirconio en fase α -Zr [7, 26], se ajustaron las expresiones polinomiales indicadas en la Tabla 3.2.

Tabla 3.2: Propiedades mecánicas para aleaciones de zirconio

material	μ [Pa]	ν
Zircaloy-2 [26]	$3.9 \times 10^{10} - 1.2 \times 10^7 T - 7.3 \times 10^2 T^2$	$0.376 - 1.93 \times 10^{-5} T - 5.11 \times 10^{-8} T^2$
Zircaloy-4 [7]	$4.04 \times 10^{10} - 2.168 \times 10^7 T$	0.32
Zr-2.5%wt Nb [26]	$4.24 \times 10^{10} - 2.2 \times 10^7 T$	0.34

El modelo requiere como parámetro de entrada la densidad de dislocaciones de borde. A partir de datos experimentales de la densidad de dislocaciones a diferentes porcentajes de trabajo en frío (%CW) en Zircaloy-2 [27], se realizó el siguiente ajuste:

$$\rho [\text{m}^{-2}] = 9.55 \times 10^{11} + 9.98 \times 10^{13} \ln(\%CW + 1.135) \quad (3.31)$$

Si bien la Ec. (3.31) está dada para Zircaloy-2, se la empleó para otras aleaciones de Zr ya que no se contaba con leyes para evaluar la densidad de dislocaciones en otros casos.

3.1.2. Evaluación del modelo

El modelo fue codificado en FORTRAN 90 y se lo utilizó como un código independiente para evaluar su comportamiento, antes de ser incluido al código DIONISIO. El sistema de ecuaciones dado por las Ec. (3.17), (3.18) y (3.26), constituye un sistema rígido (*Stiff System*) debido a que las ecuaciones están acopladas entre sí. Para resolverlo, podría aplicarse el método de Euler, pero se sabe que este enfoque requiere pasos de tiempo muy pequeños, del orden de los segundos o menor, para alcanzar la convergencia de la solución y que la misma carezca de oscilaciones [28]. Dado que DIONISIO emplea pasos temporales típicamente del orden de los días, se utilizó el método de Euler implícito para resolver la evolución de la concentración de los defectos puntuales y el método de Runge–Kutta de cuarto orden para el radio de los lazos de dislocaciones.

En una primera etapa, se evaluó la respuesta del modelo a la variación de la temperatura, el tamaño medio de grano y la historia de deformación para Zircaloy–2, que es una aleación habitual usada en componentes de reactores nucleares. Las temperaturas analizadas estuvieron entre 373 [K] y 673 [K], cubriendo un amplio rango para temperaturas típicas de las vainas cuando un reactor de potencia funciona en condiciones normales. Se estudiaron los materiales en condiciones de tratamientos térmicos de recocido ($CW = 0.0$) y de trabajado en frío con un 25 % de deformación plástica ($CW = 0.25$). Para aleaciones de zirconio en estado recocido, el grano suele presentar una morfología equiaxial con dimensiones mayores a las que exhiben los granos alargados cuando el material es sometido a un proceso de deformación plástica en frío. Además, cuando una microestructura deformada plásticamente se somete a un tratamiento de recocido, se observa un aumento del factor de textura radial (f_{rr}) y una disminución del factor transversal ($f_{\theta\theta}$) [29, 30]. Tomando como base los experimentos realizados por Rogerson [12] y M. G. Isaenkova et al. [30], en la Tabla 3.3, se presenta un resumen de los parámetros microestructurales utilizados en este primer análisis.

Tabla 3.3: Parámetros microestructurales usados en el estudio paramétrico para Zircaloy–2

estado	tamaño de grano [μm]	f_{zz}	f_{rr}	$f_{\theta\theta}$
recocido	10–20	0.10	0.55	0.35
$CW = 0.25$	4–8	0.10	0.45	0.45

Para poder ejecutar el código, hubo que realizar algunas suposiciones. Las simulaciones se realizaron con un flujo constante de neutrones rápidos típico de 10^{18} [n/m²s] hasta alcanzar una fluencia de 10^{26} [n/m²], lo que corresponde a un tiempo total de irradiación de 1157 días aproximadamente.

En la Figura 3.3, se pueden observar los resultados numéricos obtenidos para las deformaciones axiales (a, b) y radiales (c, d) cuando el Zircaloy–2 se somete a irradiación a temperaturas constantes. En general, se puede observar que a mayor temperatura, mayor es la deformación alcanzada, tanto cuando el material es recocido previamente como cuando

do presenta un trabajado en frío. Esto se debe a que la cinética en el modelo propuesto está dominada por difusión, que es un proceso térmicamente activado. Entonces, a medida que aumenta la temperatura, también aumenta la movilidad de los defectos puntuales, lo que conduce a un incremento de los radios de los lazos y del trepado de las dislocaciones de borde, induciendo así mayores deformaciones. Por otro lado, para tamaños de grano menores, las deformaciones axiales totales obtenidas son mayores. Cuando el tamaño de grano disminuye, la fuerza de sumidero de los bordes de grano aumenta, produciendo así una reducción de la concentración de defectos puntuales dentro del grano. En particular, la diferencia entre la concentración de vacancias en el grano y su valor de equilibrio termodinámico tiende a disminuir generando un efecto neto predominante de los intersticiales, lo que genera un aumento de los radios de los lazos y mayor trepado de dislocaciones. Este efecto se ve potenciado por la temperatura y coincide con observaciones experimentales [31].

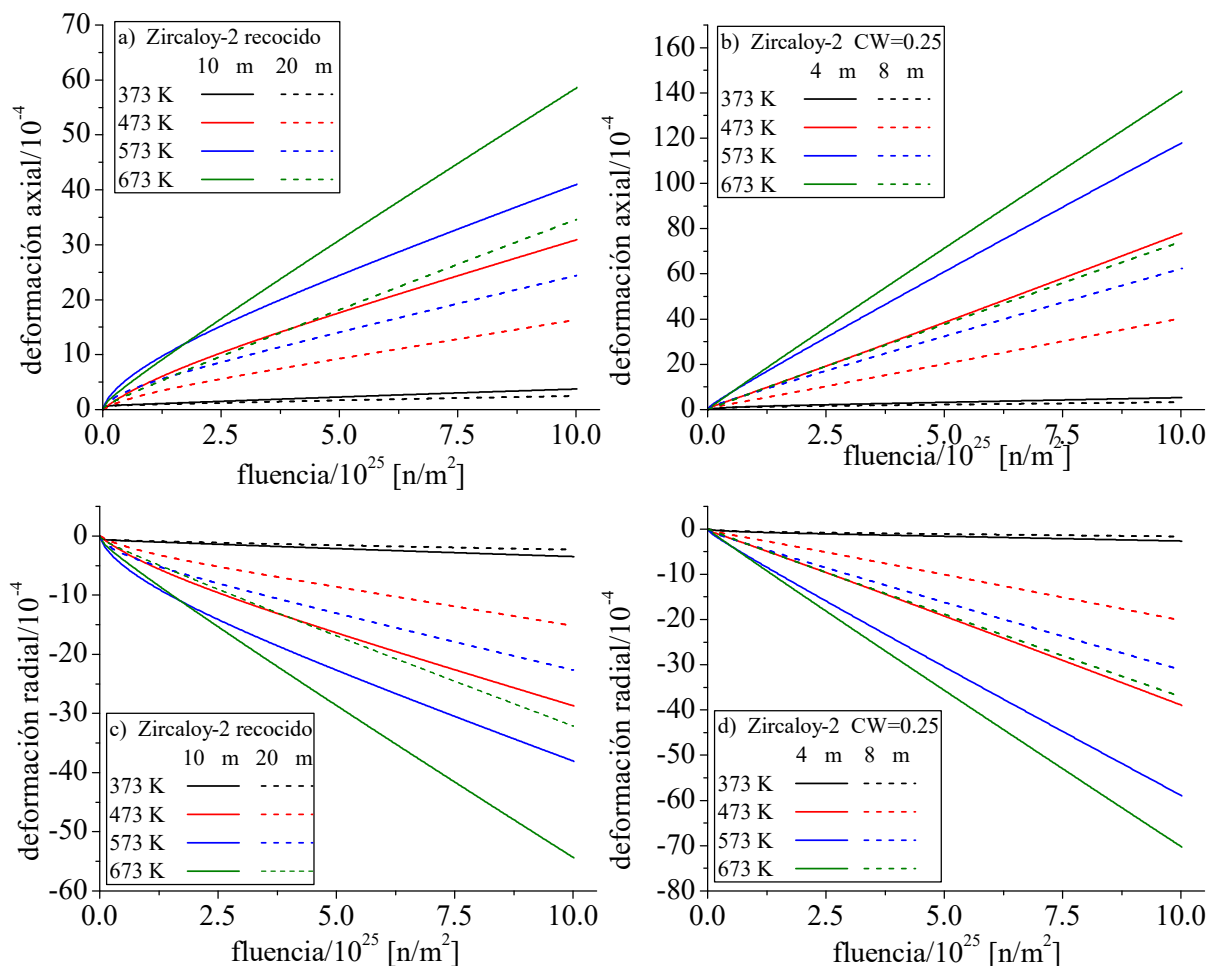


Figura 3.3: Simulación de la deformación axial (a, b) y radial (c, d) para el estudio paramétrico en Zircaloy-2 irradiado a diferentes condiciones de temperatura, tamaño de grano y deformación plástica utilizando el modelo presentado en este trabajo

En cuanto a los efectos del trabajado en frío, la principal observación es que para Zircaloy-2 existe una dependencia lineal de la deformación con la fluencia, mientras que

para el material previamente recocido la dependencia lineal ocurre para fluencias superiores a aproximadamente 2.5×10^{25} [n/m²]. Además, si se comparan las Figuras 3.3 a) y b), se puede observar que la deformación axial alcanzada en microestructuras previamente deformadas en frío es prácticamente el doble que en las sometidas a tratamientos de recocidos. Esto se puede atribuir a que en un material metálico sometido a deformación plástica en frío se produce un aumento de la densidad de dislocaciones y una reducción del tamaño de grano, al menos en una de las direcciones. Un comportamiento similar se observa para las deformaciones radiales entre las Figuras 3.3 c) y d), aunque la diferencia producida por el trabajado en frío es menor que en el caso axial ya que la orientación cristalográfica obtenida como consecuencia de esta deformación inicial es tal que el factor Kearns radial pasa de 0.55 a 0.45. En este sentido, debido a los valores de la fracción resuelta de planos basales en cada dirección, para el material en estado recocido, las deformaciones axiales y radiales son muy similares en sus magnitudes absolutas, mientras que para el material deformado en frío, las deformaciones radiales resultaron casi la mitad con respecto a los valores axiales para las temperaturas y tamaños de grano analizados. Todos los efectos descritos anteriormente y los resultados alcanzados son consistentes con el comportamiento del material esperado a partir de datos experimentales disponibles en la literatura [2, 31].

Los estudios experimentales sobre el crecimiento inducido por irradiación en aleaciones de zirconio son relativamente escasos y antiguos. Una serie de investigaciones llevadas a cabo en la década de 1980 constituyen una fuente completa de casos bien documentados que se midieron en el reactor MTR DIDO de Harwell [11, 12, 32-36]. Asimismo, Fidleris [31, 37] y Holt [38] dan cuenta de algunos experimentos en zirconio puro, Zircaloy-2 y Zr-2.5%Nb, en los que se estudiaron los efectos del trabajado en frío y del tratamiento térmico de alivio de tensiones durante este tipo de fenómeno. Este conjunto de datos experimentales fueron usados a lo largo de este trabajo para validar el modelo presentado.

Tabla 3.4: Parámetros para Zircaloy-2 y condiciones de irradiación en las simulaciones

ID	condición	tamaño de grano [μm]	f_{zz}	temperatura [K]	$\dot{\phi}$ [n/m ² s]
A-	recocido	20.0	0.10	353; 553; 573	4.1×10^{17}
				633; 673	10.8×10^{17}
L-	$CW = 0.25$	8.0	0.10	553; 573	4.1×10^{17}
				633; 673	10.8×10^{17}

Luego de la evaluación del comportamiento del modelo, se simuló el crecimiento por irradiación en muestras recocidas y trabajadas en frío de Zircaloy-2 irradiadas con un flujo de neutrones rápidos entre 4.1 y 10.8×10^{17} [n/m²s] hasta alcanzar fluencias entre 1.13 y 17.3×10^{25} [n/m²]. Las muestras trabajadas en frío presentaban granos alargados con un tamaño medio que oscilaba entre 5 y 8 [μm] mientras que para las muestras recocidas los granos eran equiaxiados con un tamaño medio de 20 [μm] [11, 12]. Los principales

parámetros seleccionados y utilizados en las simulaciones para el Zircaloy-2 se enumeran en la Tabla 3.4.

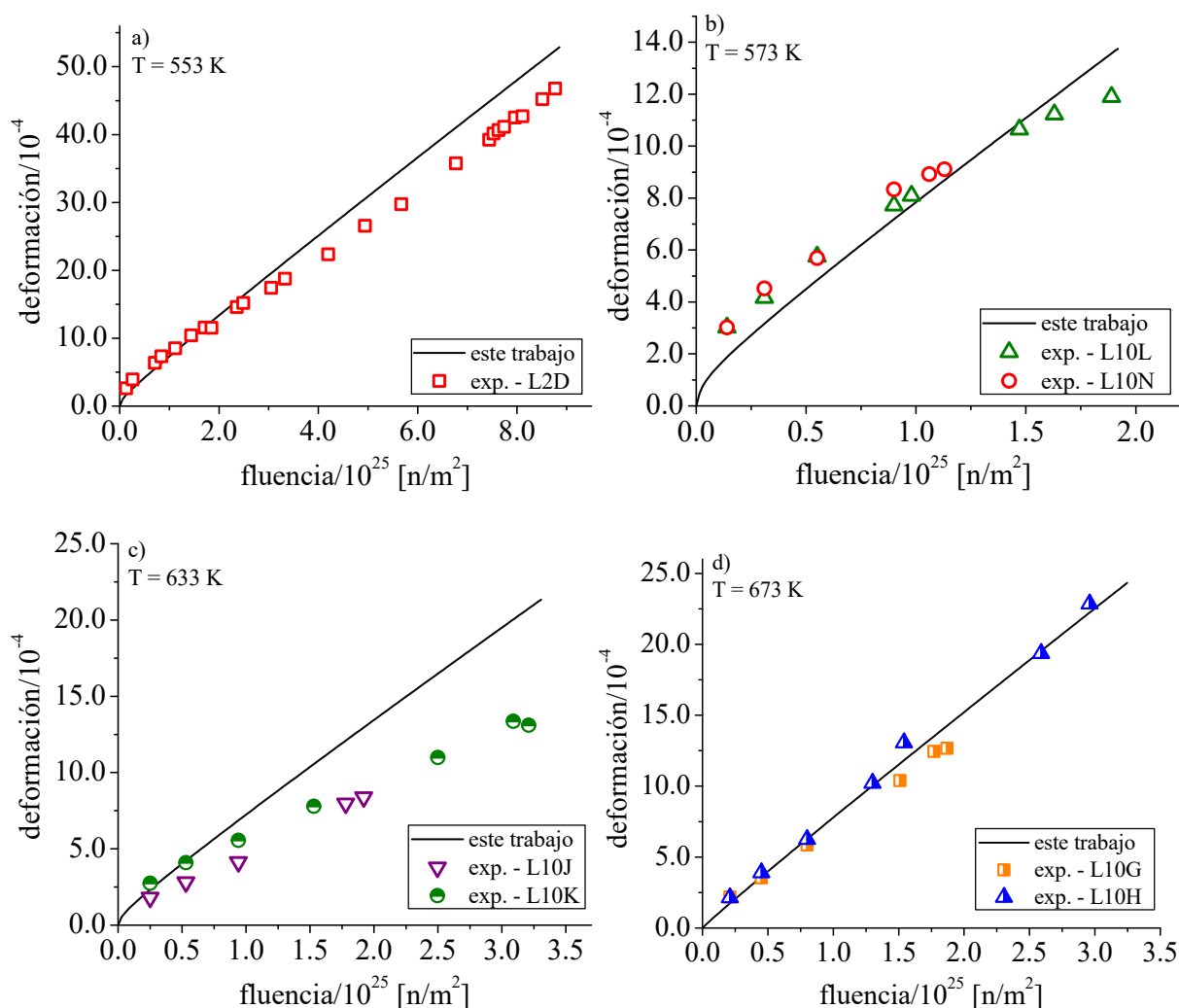


Figura 3.4: Simulación del crecimiento axial en muestras de Zircaloy-2, previamente trabajadas en frío, irradiadas a diferentes condiciones y su comparación con datos experimentales [11].

La Figura 3.4 muestra una comparación para la deformación axial calculada y la medida para Zircaloy-2 con $CW = 0.25$ a diferentes temperaturas y condiciones de irradiación. Para las muestras irradiadas a 573 [K] y 673 [K], se observa una buena concordancia entre los resultados experimentales y los obtenidos mediante cálculo numérico. En a) se pueden ver algunas diferencias para la muestra irradiada a una temperatura de 553 [K]. Para este caso, la simulación coincide con los datos experimentales hasta $2.5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ y para fluencias superiores, el crecimiento calculado es ligeramente superior al medido. Sin embargo, la máxima desviación relativa obtenida entre el modelo y los experimentos es inferior al 11 %. Las diferencias más significativas se observan en la Figura 3.4 c) para las muestras irradiadas a 633 [K], en donde el modelo genera una sobreestimación de la deformación en la mayor parte del rango de fluencias estudiado. Algunas de estas desviaciones pueden atribuirse a que las condiciones experimentales abarcaron un amplio

rango en términos de flujo de neutrones y tamaños de grano sin detallarlo para cada muestra por lo que se usaron los valores indicados en la Tabla 3.4. Además, el proceso de trabajado en frío produjo granos alargados y los elementos e impurezas de la aleación pueden influir en la movilidad de los defectos, cuyos efectos no se han evaluado en el modelo, considerando idealmente granos esféricos y la difusión de los defectos puntuales en la red del Zr.

En la Figura 3.5 se presenta la evolución de la deformación axial de una muestra recocida de Zircaloy-2 irradiada a una temperatura de 353 [K]. En la simulación, la deformación crece rápidamente en los primeros momentos de irradiación seguido de un leve crecimiento alcanzado prácticamente un estado de saturación. Por otro lado, se observa que, experimentalmente, la deformación crece rápidamente en un primer instante, aunque en menor medida que la simulada, y luego aumenta hasta alcanzar cierto nivel de saturación para una fluencia de alrededor de 8×10^{25} [n/m²]. Aunque se observan

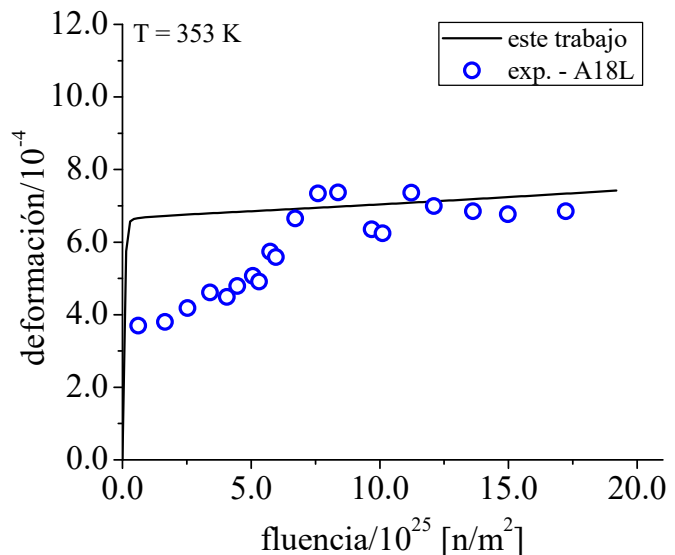


Figura 3.5: Simulación del crecimiento por irradiación axial de una muestra de Zircaloy-2, previamente recocida, irradiada a 353 [K] [11].

claras desviaciones en el comportamiento en la primera etapa, el modelo alcanza el valor de saturación medido experimentalmente. Las múltiples simplificaciones realizadas en el modelo pueden ser las causantes de las diferencias obtenidas.

La Figura 3.6 presenta el crecimiento por irradiación axial en función de la fluencia para muestras recocidas de Zircaloy-2 irradiadas a diferentes condiciones de temperatura. Si bien el modelo presentó un buen comportamiento general, en especial teniendo en cuenta la gran cantidad de variables involucradas, se pueden observar algunas desviaciones. En particular en a) para 553 K, se produce la mayor desviación del modelo con respecto a las deformaciones medidas. Para este caso, se observó experimentalmente el fenómeno de ruptura (*breakaway*) en donde la deformación se dispara luego de un comportamiento que tiende hacia cierta saturación, como se puede ver a partir de una fluencia de 4.0×10^{25} [n/m²]. Este fenómeno está asociado a las dislocaciones tipo $\langle c \rangle$ [31], que no fueron contempladas entre las hipótesis del modelo, por lo que no puede reproducirse y se obtiene una sobrestimación de la deformación. El conjunto de datos experimentales mostrados en b) se empleó para ajustar los parámetros mostrados en la Tabla 3.1, como puede observarse por el buen acuerdo de los datos con la línea continua que representa la simulación. En c) y d), para temperaturas de 633 [K] y 673 [K], respectivamente, los valores medidos

presentan importantes dispersiones para muestras irradiadas en condiciones similares y los resultados del modelo se sitúan entre cada conjunto de datos para ambas temperaturas. A pesar de estas desviaciones, es importante señalar que los valores obtenidos están en el orden de magnitud de las mediciones experimentales.

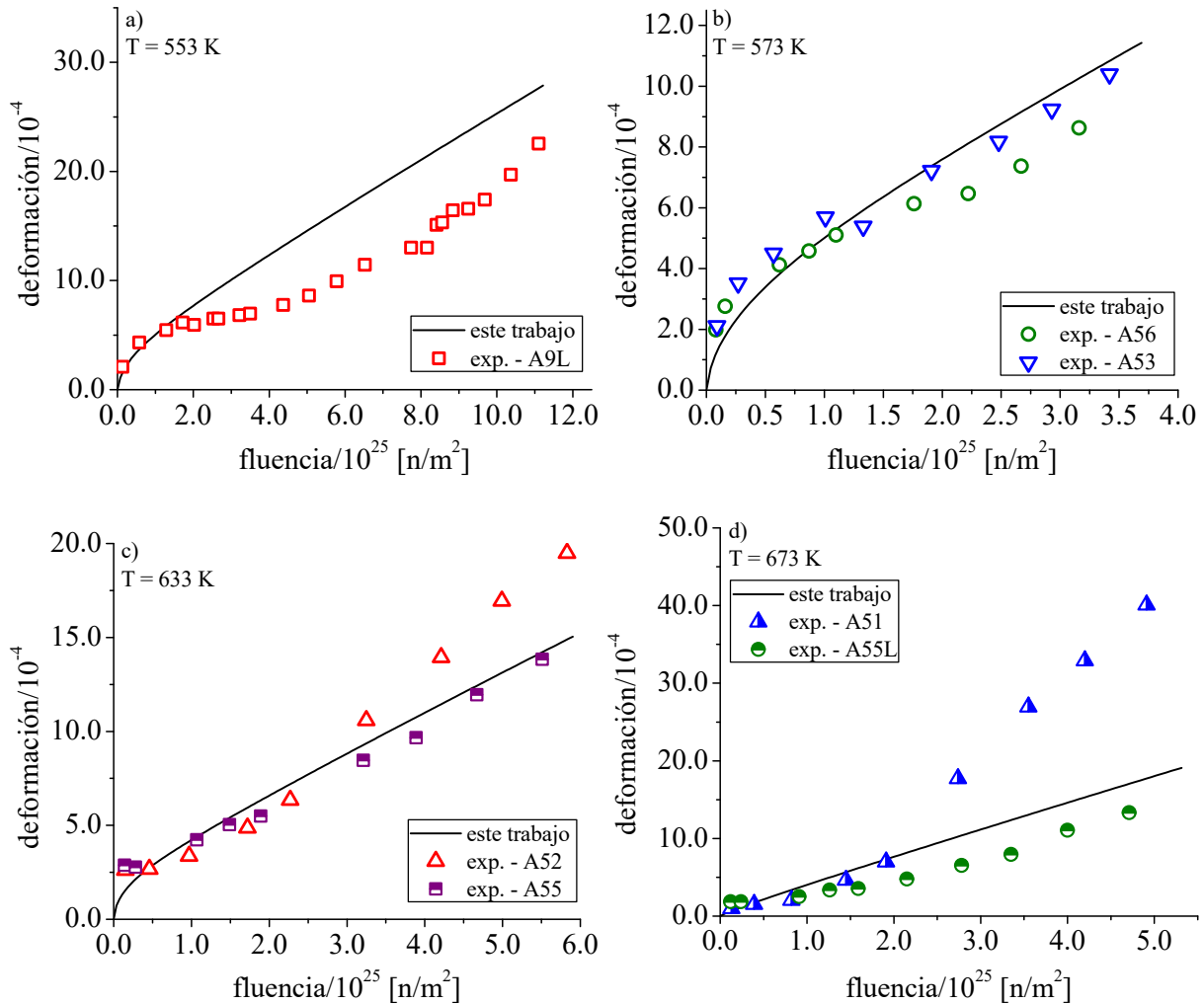


Figura 3.6: Simulación del crecimiento axial en muestras de Zircaloy-2, previamente recocidas, irradiadas a diferentes condiciones y su comparación con datos experimentales [11].

Luego del análisis para Zircaloy-2, el modelo se utilizó para simular el crecimiento en muestras de Zr-1.5%Sn que fueron previamente recocidas y posteriormente irradiadas a 353 [K] y 553 [K]. El flujo medio de neutrones rápidos informado fue de 7.5×10^{17} [n/m²s]. Todas las muestras presentaban un factor de textura axial (f_{zz}) de 0.05 y un tamaño medio de grano de 20 [μ m] [12, 36]. Las propiedades mecánicas utilizadas para el Zr-1.5%Sn fueron las mismas que para el Zircaloy-2 debido a su similitud en la composición química.

La Figura 3.7 presenta la deformación debida al crecimiento axial en función de la fluencia para muestras de Zr-1.5%Sn y su comparación con los datos experimentales. Para 353 [K], los datos experimentales muestran una saturación temprana a 3×10^{25} [n/m²], a partir de la cual se observa un crecimiento lineal con una tasa de deformación relativamente pequeña. La simulación presenta un comportamiento similar con buena

concordancia con los valores medidos, aunque la saturación y el comportamiento lineal comienza en los primeros días de irradiación. En cuanto a la mayor temperatura, se observan algunas desviaciones entre los valores calculados y los medidos, especialmente por encima de 4×10^{25} [n/m²], donde se observa experimentalmente un aumento lineal de la deformación. A pesar de las diferencias observadas, el acuerdo con los valores medidos es razonable.

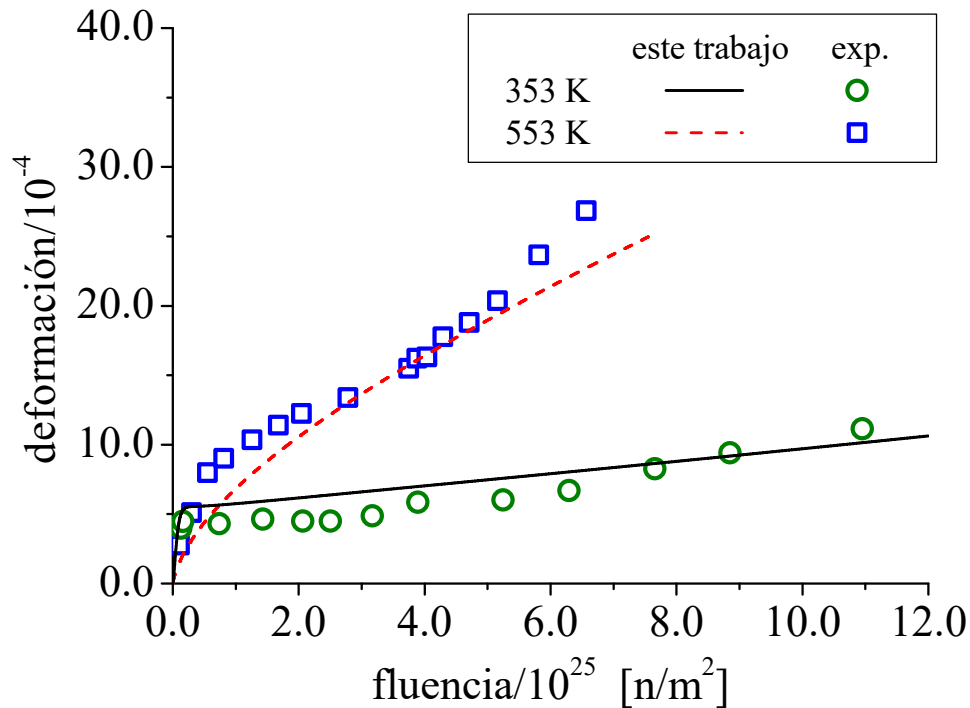


Figura 3.7: Crecimiento por irradiación axial para muestras recocidas de Zr-1.5% Sn calculado a 353 y 553 [K] y su comparación con datos experimentales [12, 36].

Adicionalmente a las aleaciones mencionadas previamente, el modelo se probó para muestras de Zr-2.5%Nb irradiadas en flujos de neutrones entre 1.16×10^{18} [n/m²s] y 5.6×10^{17} [n/m²s] hasta una fluencia de 4.0×10^{25} [n/m²]. La temperatura de ensayo fue 353 [K]. El análisis de la microestructura mostró factores de Kearns iguales a 0.03, 0.38 y 0.59 en dirección axial, radial y transversal, respectivamente. Además, se registraron granos alargados de 1 [μm] de ancho y entre 5 a 7 [μm] de largo, producto de una deformación plástica pequeña de $CW = 0.005$ [12, 33].

La Figura 3.8 muestra las deformaciones axial y transversal en función de la fluencia para muestras de Zr-2.5%Nb irradiadas a 353 [K]. La primera simulación en este caso se realizó considerando un tamaño de grano medio de 3 [μm] y los parámetros y consideraciones para el Zircaloy-2, ya que no se contaban con datos específicos para esta aleación. Los resultados obtenidos pueden observarse en líneas punteadas roja y negra para crecimiento axial y transversal, respectivamente. Los cálculos indican una saturación temprana en la deformación de crecimiento para ambas direcciones con un leve incremento lineal posterior, mientras que los datos experimentales mostraron un crecimiento lineal mayor. Estas

diferencias podrían estar fundamentadas en que se utilizaron los parámetros del Zircaloy-2 para Zr-2.5%Nb. Teniendo esto en cuenta, se estudiaron algunas modificaciones en los parámetros del modelo y se logró un mejor ajuste como se puede observar en las líneas verdes continua y de trazo de la Figura 3.8.

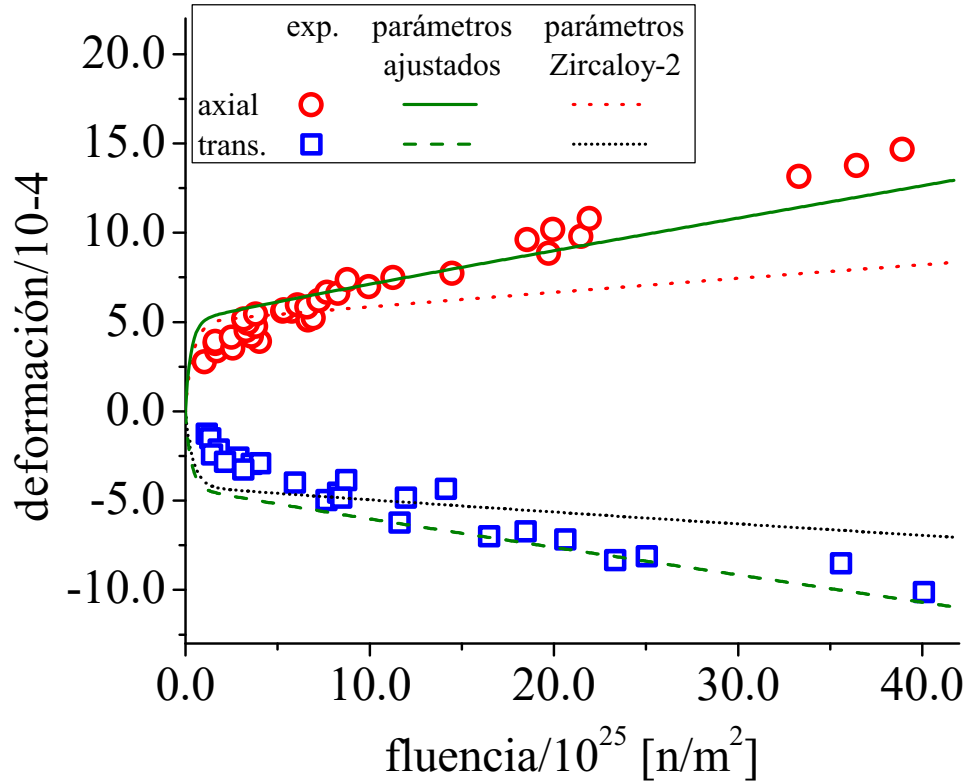


Figura 3.8: Crecimiento por irradiación axial y transversal para Zr-2.5%Nb recocido e irradiado a 353 [K] y su comparación con medidas experimentales [12, 33].

Las modificaciones introducidas en el modelo para Zr-2.5%Nb son:

- La densidad de dislocaciones calculada por medio de la Ec. 3.31 fue de 5×10^{13} [m⁻²], que es inferior a los datos medidos en esta aleación en condiciones similares de trabajado en frío. De acuerdo con Long et al. [39], para esta aleación sin deformar y con $CW = 0.01$, la densidad de dislocaciones es de 0.69×10^{14} y 1.95×10^{14} [m⁻²], respectivamente. Para el caso analizado con $CW = 0.005$, se utilizó un valor medio entre los mencionados anteriormente:

$$\rho_{[Zr-2.5Nb]} = 1.3 \times 10^{14} [\text{m}^{-2}] \quad (3.32)$$

- En el trabajo reciente de Adrych-Brunning et al. [40], se demostró que los precipitados de segundas fases aumentan la tasa de daño neutrónico en comparación con el Zr puro, por lo que se aumentó en un 50% la tasa de generación de defectos puntuales para lograr los resultados de la Figura 3.8:

$$\dot{K} = 1.5 \times \Psi \times \dot{\Phi} \quad (3.33)$$

- Además, durante el proceso de deformación y tratamientos térmicos, típicos para la fabricación de tubos de presión, se obtiene una alta densidad de una fase β rica en Nb, de hasta el 10 % del volumen de la estructura, que puede tener una influencia importante en los procesos difusivos y por lo tanto en la recombinación de defectos puntuales [39, 41]. Entonces, se ajustó la Ec. 3.8, reduciendo a un 10 % el efecto neto de recombinación:

$$Re_{vi} = 0.1 \times \alpha (D_i + D_v) C_i C_v \quad (3.34)$$

Aunque en la Figura 3.8 se observan algunas desviaciones entre las simulaciones y los datos experimentales, las modificaciones propuestas presentan un mejor comportamiento del modelo. Es importante hacer notar que se requeriría una mayor cantidad de datos experimentales para poder obtener un mejor ajuste de las propiedades para Zr-2.5 %Nb, que reafirmen las modificaciones realizadas.

La desviación estándar de las medidas experimentales analizadas [11, 33, 34] fue inferior a 1 [μm] para todas las probetas, que presentaban una longitud de 127 [mm] cada una. Esto se traduce en una desviación estándar de la deformación inferior a 8×10^{-6} , que resulta despreciable frente a los niveles de crecimiento alcanzados.

Las comparaciones realizadas anteriormente muestran que el modelo presentado responde adecuadamente bajo diferentes condiciones a pesar de mostrar ciertas desviaciones posiblemente atribuidas a las simplificaciones realizadas.

3.1.3. Validación del modelo dentro del código DIONISIO

Tras la extensa evaluación del modelo de crecimiento por irradiación presentado en la sección 3.1.2, actuando de manera independiente, se lo incluyó como una nueva subrutina dentro del código DIONISIO para evaluar su comportamiento en conjunto con el resto de los fenómenos considerados por el código. En esta sección se presentan los resultados obtenidos con DIONISIO.

La versión de producción de DIONISIO se utilizó para simular barras combustibles correspondientes a los experimentos IFA 562.1 (12 barras con medidas en cuatro rampas de potencia) [42]), el proyecto INTER-RAMP (16 barras) [43], el programa TRIBULATION (11 barras) [44] y los experimentos Over-Ramp (39 barras) [45].

Para el experimento IFA 562.1 se utilizaron pastillas de UO_2 huecas y sólidas con un enriquecimiento del 3.95 % y una porosidad media del 4.3 %. Todas las pastillas tenían un diámetro nominal de 10.59 [mm] y las pastillas huecas tenían un orificio central de 2 [mm] de diámetro. Todas las barras presentaron un *gap* de 70 [μm], aproximadamente, entre la pastillas y la vaina. El material del *cladding* fue Zircaloy-2 recocido y recristalizado (RX). Dado que no se especificaba la microestructura de la vaina, se adoptaron los datos experimentales correspondientes a un material similar en las mismas condiciones antes de la irradiación, en particular, se seleccionó un tamaño medio de grano de 7 [μm] [43].

En los casos del Proyecto INTER-RAMP seleccionados para este estudio, el combus-

tible utilizado fue UO_2 con enriquecimientos de entre el 2.8 y el 3.5 % y una porosidad media del 5 %. El *gap* fue entre 80 y 250 [μm] y el material de la vaina fue Zircaloy-2 con un tratamiento térmico de recristalización (RX) en algunos casos y trabajado en frío y tratamiento de alivio de tensiones (SR) en otros. Los valores informados para el tamaño medio de grano de la vaina, fueron 7 y 6 [μm] para los materiales RX y SR, respectivamente. Los autores no incorporaron detalles sobre el porcentaje de trabajado en frío, por lo que, de acuerdo con datos experimentales comparables [38], se seleccionó $CW = 0.20$ para el material SR.

El proyecto TRIBULATION contiene datos de 19 casos en los que se utilizaron barras fabricadas por BelgoNucleaire (BN, 11 barras) y Brown Boveri Reactor GmbH (BBR, 8 barras). Debido a que no se midieron los cambios de longitud de las barras de BBR, sólo se utilizaron los once experimentos de BN. Las pastillas de UO_2 se fabricaron con enriquecimientos de ^{235}U de 8.25 % y 5.76 % y densidades entre 94.30 y 95.04 %TD. Las pastillas presentaban un diámetro nominal de 8.04 [mm]. Todas las barras tuvieron un *gap* de 98 [μm], aproximadamente. El material de la vaina fue Zircaloy-4 con un tratamiento de alivio de tensiones con un tamaño medio de grano de 10 [μm] y una fracción de deformación plástica en frío igual a 0.60, aproximadamente.

Los experimentos OVER-RAMP se componen de barras de reactores PWR divididas en dos grupos, 15 barras de Westinghouse (W) y 24 de Kraftwerk Union (KWU/CE). El primer grupo tenía un enriquecimiento nominal del 8.26 % con un diámetro de pastilla de 8.19 [mm], una porosidad de 4.32 % y un *gap* de 82 [μm]. El material del *cladding* fue Zircaloy-4 con un tratamiento de recocido, con un tamaño medio de grano de 10.5 [μm]. Las barras KWU/CE tenían un enriquecimiento nominal de 3.0-3.1 %, con un diámetro nominal de 9.1 [mm] y una densidad entre 10.27 y 10.42 [g/cm^3]. El material del *cladding* fue Zircaloy-4 con tratamiento de alivio de tensiones, con un tamaño medio de grano de 12.0 [μm] y una fracción de trabajado en frío de 0.62.

El factor de textura axial no se indicó en los experimentos descritos anteriormente y se utilizó 0.10, que es un valor muy común entre un gran conjunto de datos experimentales [12].

La Figura 3.9 muestra una comparación entre los valores de deformación axial calculados y medidos para los experimentos IFA 562, Inter-Ramp, TRIBULATION y Over-Ramp. Puede observarse que aproximadamente el 90 % de los casos estudiados toman valores dentro de una banda de $\pm 10\%$ del valor máximo medido con respecto a la línea de acuerdo perfecto. Las mayores dispersiones se encuentran en algunas mediciones superiores de los casos TRIBULATION, donde los valores simulados subestiman los resultados. La deformación axial está dada por la Ec. 3.30, en donde el factor $(1 - 3f_{zz})$ aumenta al disminuir f_{zz} , por lo que el valor del factor de textura axial empleado en las simulaciones podría dar cuenta de las diferencias observadas, si el valor real fuera menor.

En la Figura 3.10 se presentan las simulaciones realizadas con el código DIONISIO

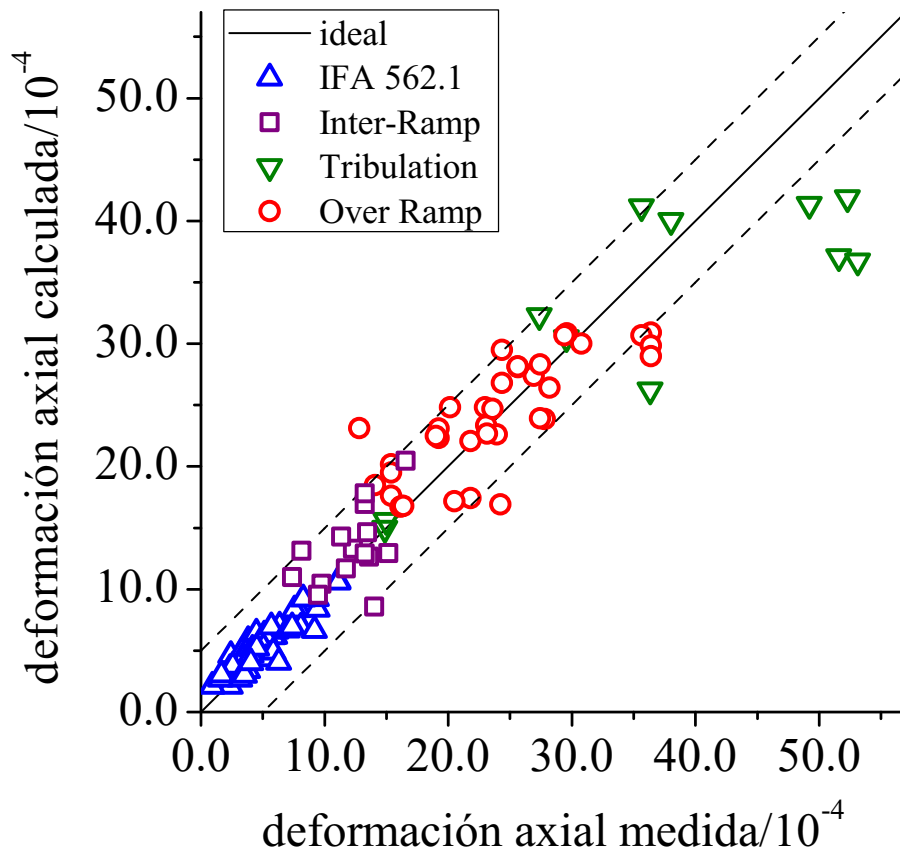


Figura 3.9: Comparación entre los resultados experimentales para la deformación axial y las simulaciones realizadas con DIONISIO, ejecutando el modelo presentado en este trabajo. [42-45].
Las líneas punteadas indican $\pm 10\%$ del máximo valor medido.

utilizando diferentes modelos y su comparación con un conjunto de los datos de los experimentos señalados previamente. Si bien a simple vista puede inducirse un mejor comportamiento por parte del nuevo modelo, se debe tener en cuenta algún parámetro numérico para asegurar esto. Entonces, para definir la bondad del ajuste de cada modelo se utilizó el coeficiente de correlación de concordancia de Lin (ρ_C) (Ver Apéndice A). Este factor indica una concordancia perfecta cuando $\rho_C = 1$ y que no existe correlación si vale 0. En este caso se utiliza simplemente de modo comparativo entre los modelos. En la Tabla 3.5 se presentan los valores de ρ_C junto con el intervalo de confianza para un nivel de significancia igual a 0.05.

Tabla 3.5: Coeficientes de correlación de concordancia entre los modelos de DIONISIO

modelo	ρ_C	intervalo de confianza
1	0.7236	[0.5920; 0.8175]
2	0.5123	[0.3659; 0.6340]
este trabajo	0.8005	[0.6953; 0.8721]

Cómo puede verse en la Tabla 3.5, el mejor coeficiente de correlación se obtiene con el modelo desarrollado en este trabajo, mostrando un mejor comportamiento del código

go, a pesar de las diferencias observadas, en especial para deformaciones experimentales mayores a 40×10^{-4} que se encuentran subestimadas por el cálculo numérico.

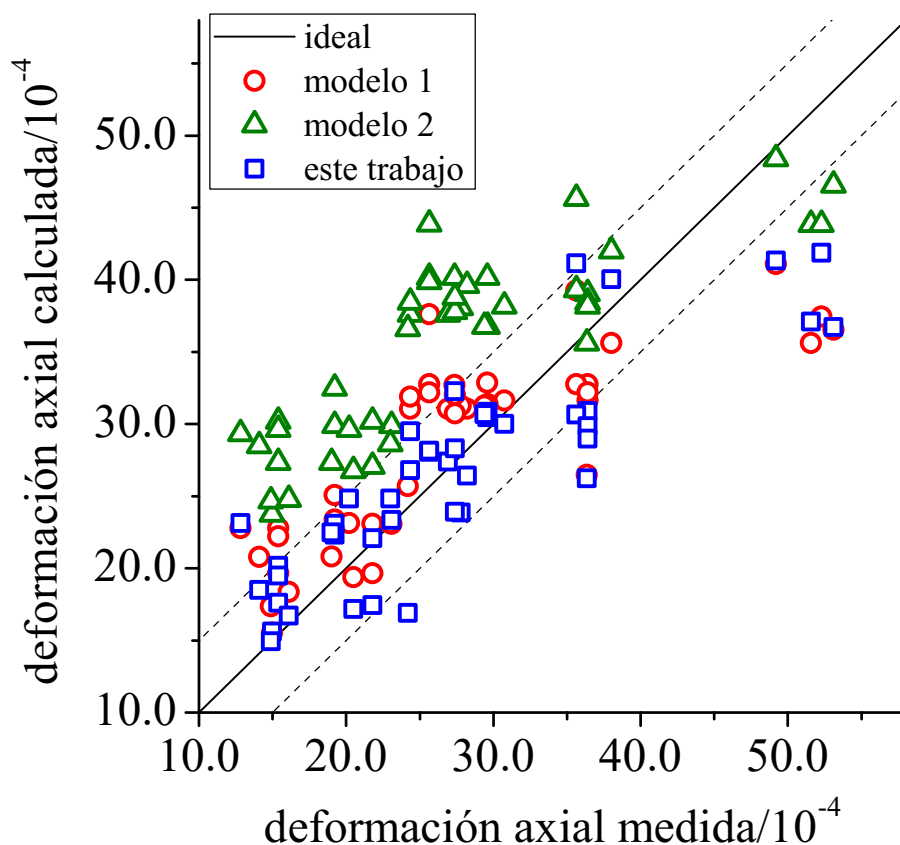


Figura 3.10: Comparación entre la deformación axial calculada y medida para los experimentos TRIBULATION [44] y OVER-RAMP [45] utilizando DIONISIO con diferentes modelos de crecimiento por irradiación.

Las líneas punteadas indican $\pm 10\%$ del máximo valor medido.

Una vez incluido el modelo de crecimiento por irradiación dentro de DIONISIO, fue necesario evaluar su funcionamiento y capacidad de predicción, en conjunto con el resto de los fenómenos modelados en el código. Uno de los más destacados, es la interacción entre la pastilla y la vaina, cuando se produce contacto mecánico durante la operación (PCMI). Para estudiar en detalle este caso, se utilizaron dominios tridimensionales. A continuación se muestran resultados del experimento IFA 562.1[42], la denominada "barra combustible 2". En la Figura 3.11 a) se presenta la evolución de la contribución de diferentes fenómenos en la deformación axial. La línea azul continua representa la suma de las deformaciones plásticas debidas al *creep* (línea azul discontinua) y al crecimiento por irradiación (línea negra discontinua), mientras que la línea verde continua representa la superposición de los fenómenos mencionados con la dilatación térmica (línea naranja continua) a lo largo del historial de potencia. Los datos experimentales representados con cuadrados (\square) corresponden a las medidas obtenidas al final de una rampa de potencia decreciente, por lo que su valor sólo tiene en cuenta la deformación permanente inducida por el *creep* y el crecimiento por irradiación, mientras que los indicados con

círculos (\circ) corresponden a medidas al principio de las rampas, que incorporan el efecto de la dilatación térmica del metal. Puede observarse que a partir de 3.8 [MWd/kgU], las predicciones de la deformación permanente concuerdan bien con las mediciones. La simulación de la deformación total concuerda muy bien con los valores experimentales por debajo de 6 [MWd/kgU], pero para quemados superiores se observa una cierta desviación. Esto coincide con el inicio del PCMI, que tiene lugar alrededor de ese quemado e induce un crecimiento adicional de la vaina a partir del hinchamiento del combustible. En la Figura 3.11 b) se muestra la evolución del radio externo de la pastilla y el interno de la vaina a lo largo del quemado, en donde el PCMI ocurre a partir de un quemado igual a 5 [MWd/kgU], aproximadamente. Cuando también se tiene en cuenta esta contribución, el cálculo numérico alcanza un mejor acuerdo con lo medido.

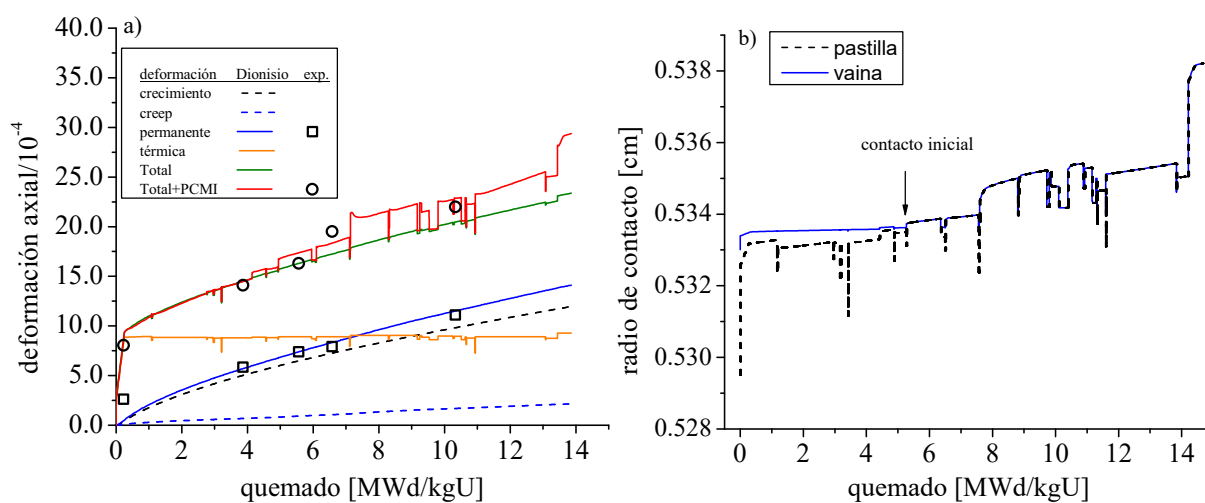


Figura 3.11: a) Simulación de la deformación axial de la vaina de la barra 2 del experimento IFA 562 en función del quemado y su comparación con los datos experimentales [42]. b) Evolución del radio interno de la vaina y del radio externo de la pastilla en función del quemado. El contacto comienza a unos 5 [MWd/kgU].

Como pudo verse durante la sección 3.1.2 y la presente, a pesar de las desviaciones señaladas, el nuevo modelo desarrollado logra representaciones más precisas de los datos experimentales.

3.2. Modelos de crecimiento de óxido y captura de hidrógeno

La corrosión uniforme y la captura de hidrógeno asociada de las vainas de aleaciones de zirconio son mecanismos que limitan la vida útil de las barras combustibles en los reactores refrigerados por agua. Por un lado, la formación de una capa de óxido deteriora la conductividad térmica de la vaina, aumentando la temperatura del sistema. Por otro lado, la incorporación de pequeñas cantidades de hidrógeno afecta a las propiedades mecánicas de la vaina siendo esto clave durante el contacto entre la pastilla y la vaina. Una buena determinación de estos procesos resultan fundamental para evaluar el comportamiento de un combustible nuclear, en especial para las validaciones realizadas en este trabajo ya que la capacidad de extracción de calor por el refrigerante tiene claras implicancias en estos fenómenos. A continuación se presentan los modelos empleados en DIONISIO.

El Zr reacciona de forma activa con el oxígeno y reduce al agua para formar un óxido denominado zirconia (ZrO_2). A bajas temperaturas, cercanas a la temperatura ambiente, la capa de zirconia formada es densa y presenta buena adhesión, actuando de manera de capa protectora.

A temperaturas de operación normal en un reactor, la cinética de corrosión es compleja. Al comienzo de su formación, se forma una capa protectora que disminuye paulatinamente la velocidad de corrosión, y el espesor (e_{ox}) se puede representar con la siguiente ley en función del tiempo:

$$e_{ox} = At^m \exp - \frac{\Delta H}{RT} \quad (3.35)$$

en donde A y m son constantes del modelo, ΔH es la energía de activación de la corrosión, R es la constante de gases ideales, T es la temperatura absoluta y t es el tiempo en [días].

Este comportamiento permanece hasta que el óxido alcanza un espesor entre 1.5 y 2.5 [μm], a partir del cual la velocidad de corrosión se vuelve prácticamente constante. La energía de activación corresponde a la de la difusión de oxígeno en zirconia, ya que la reacción de oxidación está controlada por la difusión de vacancias de oxígeno a través del óxido [1, 7].

En el caso de la oxidación del zirconio, la relación de volúmenes específicos entre el óxido y el metal base (factor de Pilling-Bedworth) es de 1.56. Entonces, cuando la zirconia se forma en una primera etapa en contacto con el Zr, se la somete a importantes tensiones de compresión para contemplar su expansión. Esto hace que el óxido de zirconio crezca con una estructura tetragonal, que es una fase estable de alta presión. Mientras el espesor de la capa de óxido sea pequeño, la fase se mantiene estable debido al balance de tensiones de tracción que se producen en el metal base. No obstante, a partir de un determinado espesor, la deformación plástica inducida en el Zr genera una caída de las tensiones de compresión, desestabilizando la estructura cristalina y transformándose en una fase monoclinica. Esta transformación está asociada a una formación de porosidad muy fina en el óxido que ayuda a compensar la incapacidad de deformación de los granos

de zirconia. Por lo tanto, se obtiene zirconia formada por dos capas: una cercana a la interfaz metal-óxido que tiene fase tetragonal y actúa como capa protectora, y el resto está formada por zirconia porosa con estructura monoclinica. Finalmente, cuando la capa de zirconia crece por arriba de los 80 $[\mu\text{m}]$, el óxido pierde sus propiedades mecánicas pudiendo desprenderse [1].

La formación de la estructura mencionada permite explicar el comportamiento de la corrosión de Zr bajo condiciones exclusivamente térmicas. Cuando el Zr, o aleación de Zr, se somete a condiciones de irradiación, el comportamiento cualitativo de la evolución de la corrosión en el tiempo es similar al caso térmico, pero el procesos de oxidación se ve acelerado por mecanismos que aún no se encuentran totalmente dilucidados [7].

A pesar de que se han realizado diversos estudios en el pasado sobre corrosión bajo irradiación, aún no se encuentra disponible una base de datos adecuada, según informa Allison et al. [7].

A partir del modelo publicado por Allison et al. [7], DIONISIO utiliza un modelo con parámetros ajustados a partir de datos experimentales de barras combustibles:

$$\frac{de_{ox}}{dt} = \frac{6.3 \times 10^9}{e_{ox}^2} \exp\left(-\frac{16250.12}{T_{ox}}\right) \quad e_{ox} \leq 2.0 [\mu\text{m}] \quad (3.36a)$$

$$\frac{de_{ox}}{dt} = G_{ox} \exp\left(-\frac{13766.48}{T_{ox}}\right) \quad e_{ox} > 2.0 [\mu\text{m}] \quad (3.36b)$$

$$G_{ox} = 8.05379 \times 10^7 + (7.5767 \times 10^{22} \dot{\Phi})^{0.24}$$

en donde e_{ox} $[\mu\text{m}]$ es el espesor del óxido, t [días] es el tiempo de exposición, T_{ox} es la temperatura absoluta de la interfaz metal base-zirconia, $\dot{\Phi}$ $[\text{n}/\text{cm}^2\text{s}]$ es el flujo de neutrones rápidos y G_{ox} $[\mu\text{m}/\text{días}]$ es un parámetro de la ley de crecimiento cuando el espesor supera los 2 $[\mu\text{m}]$. Las Ec. (3.36) pueden resolverse por un simple método de diferencias finitas en el tiempo.

Un aspecto central, para el cálculo del espesor del óxido, es la obtención de T_{ox} utilizando la Ec. (2.7) en la que se requiere conocer la conductividad térmica el óxido (k_{ox}). La base de datos de mediciones de conductividad térmica de zirconia presenta muy alta dispersión entre los diversos autores debido a los diferentes métodos usados y tipo de óxido evaluado. En este trabajo se utiliza una correlación con la temperatura propuesta por Luscher et al. [46]:

$$k_{ox} [\text{W}/\text{mK}] = 1.9599 - 2.41 \times 10^{-4} T_{ox} + 6.43 \times 10^{-7} T_{ox}^2 - 1.946 \times 10^{-10} T_{ox}^3 \quad (3.37)$$

Como puede observarse, la Ec. (3.37) presenta una no linealidad en la temperatura. Sin embargo, debido a la baja variación que existe de k_{ox} en el rango de temperatura normal de trabajo de la vaina (entre un 1 y 2% de variación relativa para 543 y 623 [K]), para

evaluar la conductividad se toma el valor de temperatura del paso temporal anterior.

Cuando se produce la reacción de corrosión en el Zr, Ec. (3.38), una fracción del hidrógeno generado difunde a través de la capa de óxido y se incorpora al metal. Como consecuencia de esto, se produce un aumento gradual de la concentración de hidrógeno en solución sólida pudiendo alcanzar valores tan grandes como 600 [ppm]. Una vez que se supera el límite de solubilidad de la aleación, precipitan hidruros de zirconio. La presencia de estas segundas fases pueden afectar drásticamente la ductilidad comprometiendo la integridad física de la vaina, en especial cuando existe PCMI [47, 48].



Un factor comúnmente utilizado para comparar la captura de hidrógeno entre aleaciones es el factor de captura de hidrógeno (f_H), que se mide como la relación entre la cantidad de hidrógeno absorbida por el metal y la generada durante la corrosión. De acuerdo con Couet et al. [47], existe evidencia de que este factor depende fuertemente de los elementos de aleación, de la microestructura, las condiciones de corrosión e incluso de la evolución del crecimiento de óxido.

En el código FRAPCON se utiliza un modelo de captura de hidrógeno que depende únicamente del quemado y del tipo de reactor (PWR o BWR), ajustado a un determinado grupo de datos experimentales [49]. Por otro lado, Hagrman y Reymann [50] establece una dependencia con el espesor de óxido, reflejando de forma directa la interrelación entre los conceptos. En este trabajo, se emplea el modelo dado por Hagrman y Reymann [50], en donde la captura de hidrógeno contempla tres contribuciones:

$$Hup = Hup_0 + Hup_f + Hup_c \quad (3.39)$$

en donde Hup [ppm] es la captura total de hidrógeno por la aleación, Hup_0 es la concentración inicial de hidrógeno del material, Hup_f es la concentración de hidrógeno de la aleación proveniente de la pastilla combustible y Hup_c es la concentración de hidrógeno que el material absorbe como consecuencia de la reacción de corrosión con el refrigerante. Hup_0 está dado por el fabricante, entre 8 y 30 [ppm], utilizándose en DIONISIO 15 [ppm] para Zircaloy-4 o Zircaloy-2 cuando esta información no está disponible. Hup_f se calcula por medio de [50]:

$$Hup_f = 0.186 \frac{m_{\text{H}_2\text{O}} \cdot r_{fe}^2}{(r_{ve}^2 - r_{vi}^2)} \quad (3.40)$$

en donde, $m_{\text{H}_2\text{O}}$ es el contenido de agua del combustible en [ppm], que proviene de la ruta de fabricación, r_{fe} es el radio externo de la pastilla, r_{ve} y r_{vi} son los radios externos e internos del *cladding*.

Finalmente, la contribución de la corrosión se actualiza integrando la siguiente expre-

sión [50]:

$$\frac{dHup_c}{de_{ox}} = \frac{G_H f_H}{8A_H} \quad (3.41)$$

en donde los factores G_H y A_H son:

$$G_H = 4.5 \times 10^5 \frac{r_{ve}}{(r_{ve}^2 - r_{vi}^2)} \quad (3.42)$$

$$A_H = \begin{cases} 3.424614 & T_V < 500 \text{ [K]} \\ 1.203 \times 10^2 \cdot \exp(-7.11 \cdot 10^{-3} T_V) & T_V \geq 500 \text{ [K]} \end{cases} \quad (3.43)$$

siendo T_V la temperatura absoluta exterior de la vaina en contacto con el refrigerante.

De acuerdo con el modelo publicado por Hagrman y Reymann [50], el factor de captura de hidrógeno depende del espesor de capa de óxido, del tipo de reactor y aleación según lo indicado en la Tabla 3.6. K. Geelhood y Beyer [51] establece $f_H = 0.153$ a partir de una gran colección de datos obtenidos bajo diferentes condiciones que oscilan entre 0.05 y 0.45, aproximadamente. Observando este amplio rango de valores, en DIONISIO se utiliza $f_H = 0.29$ para toda condición de espesor de óxido y reactor, ya que los valores indicados usualmente en la literatura subestiman la concentración de hidrógeno en la vaina.

Tabla 3.6: Factores de captura de hidrógeno sugeridos por Allison et al. [7] y Hagrman y Reymann [50]

reactor	aleación	f_H	
		$e_{ox} < 2 \text{ } [\mu\text{m}]$	$e_{ox} \geq 2 \text{ } [\mu\text{m}]$
PWR	Zircaloy-2	0.48	1.00
	Zircaloy-4	0.12	0.12
BRW	Zircaloy-2	0.29	1.00
	Zircaloy-4	0.12	0.12

El Proyecto Saxton Plutonium formó parte de un programa global para el avance de la tecnología de reprocesamiento de plutonio en reactores refrigerados por agua. Este proyecto lo ejecutó Westinghouse Electric Corporation en cooperación con Saxton Nuclear Experimental Corporation (SNEC). Durante esta evaluación se realizaron mediciones de espesor de óxido y de captura de hidrógeno en diferentes vainas de Zircaloy-4. A partir de la estimación del flujo rápido de neutrones para este experimento ($1.625 \times 10^{15} \text{ [n/m}^2\text{s]}$) y considerando un rango típico de temperaturas externas de la vaina (583 - 623 [K]), se ejecutaron los modelos mencionados con anterioridad.

En la Figura 3.12 se muestra cómo varía el espesor de óxido de zirconio y (b) la captura de hidrógeno en función del tiempo al emplear diferentes temperaturas típicas de vainas combustibles en condiciones de operación normal. En ambos casos se observa una alta sensibilidad a la temperatura y una influencia de esta última en los tiempos en que ocurre la transición del comportamiento de la capa de óxido. Esto explica la sensibilidad observada en el capítulo 2 del crecimiento de óxido y captura de H al obtener

temperaturas de vaina levemente menores con el acople DIO-SCF. Adicionalmente, se superponen los datos medidos en el Proyecto Saxton Plutonium [52], que corresponden a rangos de mediciones tomadas a distintos tiempos para barras en diversas posiciones dentro del núcleo. Se puede notar que las simulaciones se encuentran dentro de los rangos medios para el caso del óxido y existe mejor acuerdo a 603 [K] para la captura de hidrógeno, aunque no se disponen de datos suficientes ni de condiciones precisas de temperatura por parte del experimento para un mejor análisis.

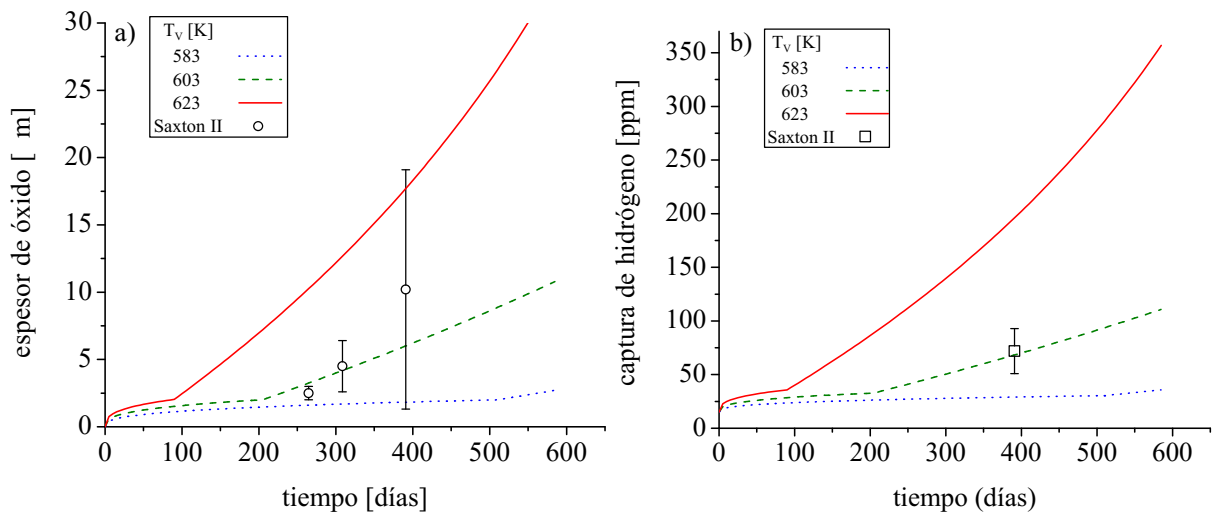


Figura 3.12: a) Crecimiento de zirconia y b) captura de hidrógeno para diferentes temperaturas y comparación con datos experimentales [52]

Referencias

- [1] H. Bailly, C. Prunier y Ménessier. *The Nuclear Fuel of Pressurized Water Reactors and Fast Neutron Reactors: Design and Behaviour*. Intercept Limited, 1999.
- [2] “Irradiation creep and growth of zirconium alloys: A critical review”. *Journal of Nuclear Materials* 521 (2019), págs. 167-244. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2019.04.021.
- [3] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. Technical Information Center, Office of Public Affairs, Energy Research y Development Administration, 1976.
- [4] D. Hull y D. J. Bacon. *Introduction to Dislocations*. Fifth. Elsevier, 2011. DOI: 10.1016/C2009-0-64358-0. URL: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/C20090643580>.
- [5] M. Griffiths, R. W. Gilbert y V. Fidleris. “Accelerated irradiation growth of zirconium alloys”. *Zirconium in the Nuclear Industry, Sixth International Symposium*. Ed. por G. M. Eucken y L. F. P. Van Swam. Philadelphia: American Society for Testing y Materials, 1989.
- [6] G. Juarez, C. P. Buioli, J. R. Santisteban, M. A. Vicente, D. Bianchi, A. V. Flores y P. Vizcaíno. “Estudio de la textura cristalina en tubos de Zircaloy-4 para vainas de elementos combustibles obtenidos mediante laminación en frío (cold pilger process)”. 1. 2014. URL: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/49/101/49101677.pdf.
- [7] C. M. Allison et al. *SCDAP/RELAP5/MOD3.1 Code manual. Volume IV: MATPRO –A Library of materials properties for light–water–reactor accident analysis*. NUREG/CR-6150, 1993.
- [8] S. I. Choi, G. Lee, J. Kwon y J. H. Kim. “Modeling of sink–induced irradiation growth of single–crystal and polycrystal zirconiums in nuclear reactors”. *Journal of Nuclear Materials* 468 (2016), págs. 56-70. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.11.014.
- [9] A. C. Marino, E. J. Savino y S. Harriague. “BACO (BArra COmbustible) code version 2.20: a thermo-mechanical description of a nuclear fuel rod”. *Journal of Nuclear Materials* 229 (1996), págs. 155-168.
- [10] 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* 374.1-2 (2008), págs. 32-43. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.06.020.
- [11] A. Rogerson. “Irradiation growth in annealed and 25 % cold–worked Zircaloy–2 between 353–673 K”. *Journal of Nuclear Materials* 154.2-3 (1988), págs. 276-285. DOI: 10.1016/0022-3115(88)90364-9.
- [12] A. Rogerson. “Irradiation growth in zirconium and its alloys”. *Journal of Nuclear Materials* 159.C (1988), págs. 43-61. DOI: 10.1016/0022-3115(88)90084-0.
- [13] F. Christien y A. Barbu. “Cluster Dynamics modelling of irradiation growth of zirconium single crystals”. *Journal of Nuclear Materials* 393.1 (2009), págs. 153-161. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2009.05.016. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2009.05.016>.
- [14] C. C. Dollins. “In–pile dimensional changes in neutron irradiated zirconium base alloys”. *Journal of Nuclear Materials* 59.1 (1976), págs. 61-76. DOI: 10.1016/0022-3115(76)90008-8.
- [15] D. Fainstein-Pedraza, E. J. Savino y A. J. Pedraza. “Irradiation–growth of zirconium–base alloys - Part I”. *Journal of Nuclear Materials* 73 (1978), págs. 151-168. DOI: 10.1016/0022-3115(78)90556-1.
- [16] A. J. Pedraza y D. Fainstein-Pedraza. “Irradiation growth of zirconium–base alloys. II. Annealed material”. *Journal of Nuclear Materials* 88.2-3 (1980), págs. 236-248. DOI: 10.1016/0022-3115(80)90279-2.

- [17] E. J. Savino y C. E. Lacia. “Radiation induced creep and growth of zirconium alloys”. *Journal of Nuclear Materials* 90.1-3 (1980), págs. 89-107. DOI: 10.1016/0022-3115(80)90248-2.
- [18] N. Sadaoka y M. Fuse. “Effects of microstructural factors on irradiation growth in zirconium–base alloys”. *Transactions of the Japan Institute of Metals* 29.12 (1988), págs. 970-976.
- [19] M. E. Cazado y A. Denis. “Model of nuclear fuel pellets densification under irradiation and isothermal conditions: Application to UO₂ fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 510 (2018), págs. 585-595. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2018.08.029.
- [20] W. G. Wolfer y A. Si–Ahmed. “On the coefficient for bulk recombination of vacancies and interstitials”. *Journal of Nuclear Materials* 99 (1981), págs. 117-123. DOI: 10.1016/0022-3115(81)90145-8.
- [21] F. Onimus y J. L. Béchade. *Radiation Effects in Zirconium Alloys*. Vol. 4. Elsevier Inc., 2012, págs. 1-31. DOI: 10.1016/B978-0-08-056033-5.00064-1. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-08-056033-5.00064-1>.
- [22] K. L. Murty e I. Charit. *An introduction to nuclear materials: fundamentals and applications*. Vol. 51. 01. 2013. DOI: 10.5860/choice.51-0303.
- [23] M. E. Cazado. “Evolución microestructural en pastillas combustibles bajo irradiación. Master’s Thesis ITS/TM 206/19”. Master Thesis. Universidad Nacional de San Martin, 2019.
- [24] F. Willaime. “Ab initio study of self-interstitials in hcp-Zr”. *Journal of Nuclear Materials* 323 (2003), págs. 205-212. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2003.08.005.
- [25] R. A. Versaci y M. Ipohorski. *Microscopía Electrónica de Aleaciones de Zirconio de Interés Nuclear*. Inf. téc. 1986.
- [26] D. O. Northwood, I. M. London y L. E. Bähén. “Elastic constants of zirconium alloys”. *Journal of Nuclear Materials* 55.3 (1975), págs. 299-310. DOI: 10.1016/0022-3115(75)90071-9.
- [27] C. H. Woo. “Modeling irradiation growth of zirconium and its alloys”. *Radiation Effects and Defects in Solids* 144.1-4 (1998), págs. 145-169. DOI: 10.1080/10420159808229674.
- [28] S. C. Chapra y R. P. Canale. *Numerical Methods for Engineers*. McGraw-Hill Education, 2015.
- [29] M. Isaenkova, Y. Perlovich, V. Fesenko y O. Krymskaya. “Changes of basal normal orientation during recrystallization of sheets and tubes from Zr–based alloys”. *Proceedings of the 6th International Conference on Recrystallization and Grain Growth (ReX&GG 2016)*. Ed. por E. A. Holm, S. Farjami, P. Manohar, G. S. Rohrer, A. D. Rollet, D. Srolovitz y H. Weiland. Pittsburgh, Pennsylvania, USA: Springer, 2016. DOI: 10.1007/978-3-319-48770-0Chemistry.
- [30] M. G. Isaenkova, Y. A. Perlovich, V. A. Fesenko y O. A. Krymskaya. “Recrystallization of cladding tubes from Zr–based alloys for nuclear reactors”. *Journal of Physics: Conference Series* 1270.1 (2019), pág. 012041.
- [31] V. Fidleris. “The irradiation creep and growth phenomena”. *Journal of Nuclear Materials* 159.C (1988), págs. 22-42. DOI: 10.1016/0022-3115(88)90083-9.
- [32] R. A. Murgatroyd y A. Rogerson. “An assessment of the influence of microstructure and test conditions on the irradiation growth phenomenon in zirconium alloys”. *Journal of Nuclear Materials* 90.1-3 (1980), págs. 240-248. DOI: 10.1016/0022-3115(80)90261-5.
- [33] A. Rogerson y R. A. Murgatroyd. “Irradiation-growth in annealed Zr–2.5 wt % Nb at 353 K”. *Journal of Nuclear Materials* 80.2 (1979), págs. 260-266. DOI: 10.1016/0022-3115(79)90189-2.
- [34] A. Rogerson y R. H. Zee. “Irradiation growth in zirconium–tin alloys at 353 and 553 K”. *Journal of Nuclear Materials* 152.2-3 (1988), págs. 220-224. DOI: 10.1016/0022-3115(88)90330-3.

- [35] A. Rogerson y R. H. Zee. “High fluence irradiation growth in single crystal zirconium at 553 K”. *Journal of Nuclear Materials* 151.1 (1987), págs. 81-83. DOI: 10.1016/0022-3115(87)90059-6.
- [36] R. H. Zee, A. Rogerson, G. J. Carpenter y J. Watters. “Effect of tin on the irradiation growth of polycrystalline zirconium”. *Journal of Nuclear Materials* 120.2-3 (1984), págs. 223-229. DOI: 10.1016/0022-3115(84)90060-6.
- [37] V. Fidleris. “The effect of cold-work and stress-relieving on the irradiation growth behaviour of zirconium alloys”. *Journal of Nuclear Materials* 46.3 (1973), págs. 356-360. DOI: 10.1016/0022-3115(73)90052-4.
- [38] R. A. Holt. “Effect of microstructure on irradiation creep and growth of zircaloy pressure tubes in power reactors”. *Journal of Nuclear Materials* 82.2 (1979), págs. 419-429. DOI: 10.1016/0022-3115(79)90024-2.
- [39] F. Long, L. Balogh y M. R. Daymond. “Evolution of dislocation density in a hot rolled Zr-2.5Nb alloy with plastic deformation studied by neutron diffraction and transmission electron microscopy”. *Philosophical Magazine* 97 (2017), págs. 2888-2914. DOI: 10.1080/14786435.2017.1356940.
- [40] A. Adrych-Bruning, M. R. Gilbert, J. C. Sublet, A. Harte y C. P. Race. “Modelling the interaction of primary irradiation damage and precipitates: Implications for experimental irradiation of zirconium alloy”. *Journal of Nuclear Materials* 498 (2018), págs. 282-289. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2017.10.022.
- [41] H. Yang, J. Shen, Y. Matsukawa, Y. Satoh, S. Kano, Z. Zhao, Y. Li, F. Li y H. Abe. “Effects of alloying elements (Sn, Nb, Cr and Mo) on the microstructure and mechanical properties of zirconium alloys”. *Journal of Nuclear Science and Technology* 52 (2015), págs. 1162-1173. DOI: 10.1080/00223131.2014.996622.
- [42] NEA-1547/01 IFPE/IFA-562.1. *Pellet surface roughness effect on thermal performances and PCMI*. Inf. téc. 1997.
- [43] NEA-1555/01-IFPE/INTER-RAMP. *Fast power ramps failures of unpressurised fuel rods*. Inf. téc. 1997.
- [44] NEA-1536/02-IFPE/TRIBULATION. *Fuel rod behaviour at high burnup*. Inf. téc. 2002.
- [45] NEA-1556/02-IFPE/OVER-RAMP. *Pellet clad interaction failure analysis, power ramps*. Inf. téc. 2006.
- [46] W. G. Luscher, K. J. Geelhood e I. E. Porter. *Comparisons between FRAPCON-4.0, FRAPCON-2.0, and MATPRO*. Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, USA, 2015.
- [47] A. Couet, T. Motta Arthur y R. J. Comstock. “Hydrogen pickup measurements in zirconium alloys: Relation to oxidation kinetics”. *Journal of Nuclear Materials* 451 (2014), págs. 1-13. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2014.03.001.
- [48] A. T. Motta et al. “Hydrogen in zirconium alloys: A review”. *Journal of Nuclear Materials* 518 (2019), págs. 440-460. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.02.042>.
- [49] K. J. Geelhood, W. G. Luscher, P. A. Raynaud e I. E. Porter. *FRAPCON-4.0: A Computer Code for the Calculation of Steady-State, Thermal-Mechanical Behavior of Oxide Fuel Rods for High Burnup*. Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, USA, 2015.
- [50] D. L. Hagrman y G. A. Reymann. “MATPRO-Version 11: a handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior” (1979). DOI: 10.2172/6442256. URL: <https://www.osti.gov/biblio/6442256>.

- [51] K. Geelhood y C. Beyer. “Hydrogen Pickup Models for Zircaloy-2, Zircaloy-4, M5TM and ZIRLOTM”. *2011 Water Reactor Fuel Performance Meeting*. Chengdu, China, 2011.
- [52] W. R. Smalley. *Saxton Core II, Fuel Performance Evaluation . Part I: Materials*. Westinghouse Electric Corporation, Pennsylvania, USA, 1971.

4. Modelos para pastillas combustibles

Los óxidos combustibles como el UO_2 pueden alcanzar altas temperaturas y generar un fuerte gradiente de temperatura en el centro y la superficie de la pastilla, que en conjunto con los efectos de la irradiación, tienen importantes efectos en la microestructura, composición local y geometría de la misma. Es por ello que para poder tener una representación adecuada del comportamiento de una pastilla combustible bajo irradiación, se deben considerar una amplia variedad de fenómenos de naturaleza física y química. Entre ellos, la densificación y el hinchamiento (*swelling*)

juegan un papel muy importante en el cambio geométrico de la pastilla y en consecuencia en la interacción o no con la vaina. El fenómeno de densificación de una pastilla combustible se produce como resultado de la contracción de los poros de fabricación. Este efecto es dominante en el período de irradiación inicial, típicamente para quemados de 2-3 [MWd/kgU], mientras que, para quemados medios y altos, se contrarresta con el hinchamiento, debido a la acumulación de productos de fisión sólidos y gaseosos [1].

Debido al proceso de fabricación del óxido combustible y para limitar el *swelling*, la pastilla suele retener cierta porosidad inicial que hace las veces de volumen de reserva para acomodar los gases de fisión. Sin embargo, a causa del efecto conjunto de la temperatura y la irradiación, los poros más pequeños (menor que $2\ \mu\text{m}$) tienden a disminuir su tamaño e incluso a desaparecer, ocasionando un aumento en la densidad del combustible. Este proceso de densificación es un fenómeno importante en la vida del combustible. En la década de 1970 se observó el deterioro de las barras combustibles de reactores PWR a causa de este fenómeno. La densificación genera un acortamiento de la columna de pastillas combustibles, generando tensiones que pueden ocasionar el colapso del *cladding*, y un aumento del *gap*, lo que deteriora la extracción del calor por el refrigerante y aumenta la temperatura del material. Por esta razón, los combustibles suelen fabricarse con formadores de poros que disminuyen el porcentaje de poros pequeños moviendo la distribución de porosidad hacia valores más grandes [2].

Por su parte, el hinchamiento tiene un efecto negativo en el comportamiento del combustible: participa en la reducción del volumen libre de la barra y como resultado aumenta la presión interna; contribuye a la reducción del *gap*, lo que puede finalizar en el contacto

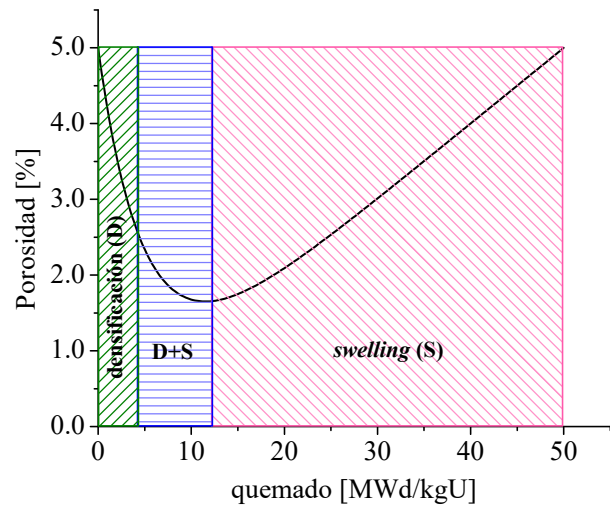


Figura 4.1: Esquema de la evolución de la porosidad con el quemado y los fenómenos intervinientes

mecánico entre la pastilla y la vaina; y reduce la conductividad del óxido debido a la formación de burbujas, aumentando su temperatura. El hinchamiento está íntimamente relacionado con la liberación de gases de fisión (FGR - *Fission Gas Release*), ya que existe un límite en la cantidad de gases que el material puede acumular y puede ser liberado hacia el volumen libre de la barra por diferentes mecanismos [2, 3].

Es por esto que, contar con una correcta descripción de esos procesos permite obtener resultados más precisos del comportamiento del combustible. A continuación, se describirán los modelos de densificación e hinchamiento desarrollados e incorporados al código DIONISIO.

4.1. Modelo de densificación en UO_2

El fenómeno de densificación es la consecuencia de la disminución del tamaño de los poros de fabricación o eliminación, cuando las condiciones de temperatura e irradiación son adecuadas [4, 5]. Se han publicado diversos modelos para describir este fenómeno a partir de la producción y difusión de los defectos puntuales en la red cristalina del UO_2 , en los cuales se adoptan diferentes suposiciones acerca de la naturaleza y la fuerza de las fuentes y sumideros de vacancias e intersticiales. Recientemente, tomando como punto de partida algunas de las ideas previamente publicadas, se ha desarrollado un modelo microestructural [6, 7], el cuál ha sido testeado en una gran cantidad de condiciones y su comparación con datos experimentales disponibles en la literatura abierta resultó satisfactoria.

Luego de probar el modelo de forma aislada, se lo incluyó en el código DIONISIO como una nueva subrutina. Además, numerosos experimentos en condiciones exclusivamente térmicas (fuera del reactor o *out-of-pile* en inglés) analizan el efecto de la temperatura, la atmósfera y la microestructura en el mecanismo de densificación [8, 9]. Estas condiciones se asemejan a las utilizadas en los ensayos de re-sinterizado utilizados por los fabricantes de combustibles como una forma de caracterización de los combustibles. Para estudiar estos experimentos, se utilizó un nuevo módulo dentro de DIONISIO denominado WIRR por sus siglas en inglés de “sin irradiación” (*Without IRRadiation*).

A continuación se realiza una descripción del modelo, su implementación en el código DIONISIO y los resultados más relevantes de este modelo.

4.1.1. Descripción del modelo de densificación

Luego de la fabricación de las pastillas de UO_2 , el óxido combustible queda con una porosidad remanente, típicamente del 7% en volumen, que permite alojar los gases que se generan durante la irradiación del combustible. Algunos poros pueden ubicarse dentro del grano (poros intragranulares) y otros, de mayor tamaño, se ubican en el borde de grano (poros intergranulares). Para una distribución inicial monomodal de poros, se considera que la cantidad de poros por unidad de volumen con radios entre r_p y $r_p + dr_p$ siguen la siguiente función [10]:

$$n_p(r_p) = \begin{cases} 0 & r_p < R_c \\ \frac{n_0 r_p^s}{s! R_0^{s+1}} e^{-r_p/R_0} & r_p \geq R_c \end{cases} \quad (4.1)$$

en donde, n_0 es la concentración total inicial de poros, s es un parámetro que puede tomar valores enteros a partir del 0, R_0 es un parámetro que, para $s = 0$, representa el valor medio de la función distribución y R_c es el límite de detección de la técnica experimental utilizada para medir el tamaño de los poros, es decir que el modelo supone que no existen

poros cuando $r_p < R_c$. Utilizando la técnica de Microscopía Electrónica de Barrido (SEM por sus siglas en inglés), Brite et al. [8] informa un límite de detección de $0.025 \mu\text{m}$, y este valor es el utilizado siempre que no se tenga datos experimentales que sugieran otro valor.

A partir de la función $n_p(r_p)$, la función distribución de la porosidad inicial, es decir, la fracción volumétrica de poros con radios en el intervalo $(r_p, r_p + dr_p)$ se calcula como:

$$p(r_p) = n_p(r_p) \cdot V_p(r_p) \quad (4.2)$$

en donde V_p representa el volumen del poro en el intervalo enunciado anteriormente.

Para cubrir una variedad más amplia de posibilidades, la distribución monomodal descrita hasta ahora se adaptó para simular poblaciones de poros bimodales y trimodales mediante la superposición de dos o tres distribuciones monomodales, respectivamente.

A continuación se describen las principales suposiciones empleadas en el modelo para representar la distribución inicial de poros en un combustible:

- Los datos experimentales de la porosidad pueden agruparse en intervalos o clases de diferentes radios para facilitar su análisis. Para la definición de las clases de poros se adoptó la propuesta realizada por Ozrin y Tarasov [11]:

$$r_j = R_0 10^{j/10} \quad j = 1, 2, \dots, n \quad (4.3)$$

- Los poros intragranulares son considerados esféricos, cuyos radios (r_p) son menores que el radio del grano (R_g) que los contienen. En este trabajo se propone la relación $r_p < 0.2 \cdot R_g$ y cualquier poro con tamaños mayores debe ser considerado parte de la población intergranular.
- Los poros intergranulares se suponen con forma lenticular, cuya forma es el resultado de la intersección de dos casquetes esféricos de igual radio (ρ_e) que forman un ángulo diedro θ , lo que genera una proyección circular en el borde de grano de radio $r = \rho_e \cdot \sin(\theta)$. El ángulo θ está controlado por el equilibrio entre las tensiones superficiales del poro y del borde de grano, y el valor considerado para UO_2 es 50° [12]. Los poros intergranulares no presentan restricciones para sus tamaños.
- Cuando los poros se miden experimentalmente, se determinan sus áreas correspondientes y luego se calculan los radios (r_p) de esferas de volumen equivalente. Según Tarasov y Veshchunov [10], en estas transformaciones se supone que el radio calculado (r_p) y el radio proyectado (r) siguen la relación $r = \kappa \cdot r_p$, siendo $\kappa = 1.294$ una constante que se obtiene a partir de la estadística de cavidades. Entonces, el volumen de poro se calcula con la siguiente expresión:

$$V_p(r_p) = \frac{4}{3} \pi r_p^3 f_V \quad (4.4)$$

$$f_V = \begin{cases} 1 & \text{para poros intragranulares} \\ \frac{\kappa^3}{\sin^3 \theta} \left(1 - \frac{3}{2} \cos \theta + \frac{1}{2} \cos^3 \theta \right) & \text{para poros intergranulares} \end{cases} \quad (4.5)$$

- Se pueden utilizar diferentes parámetros estadísticos para caracterizar una distribución. En este trabajo, se emplea un momento de tercer orden para evaluar el valor medio del radio de poro, ya que tiene en cuenta no solo la frecuencia de aparición de cada clase de poro, sino también la porción de volumen representada en la porosidad total. Esto permite una mejor representación de la distribución de la porosidad. Entonces, el valor medio se puede calcular usando [13]:

$$r_{mv} = \frac{\int_0^{\infty} r_p^4 n_p dr_p}{\int_0^{\infty} r_p^3 n_p dr_p} \quad (4.6)$$

- Otro parámetro utilizado frecuentemente para caracterizar la distribución de la porosidad es la mediana del radio en volumen (r_{medv}), que puede evaluarse a partir de:

$$\int_0^{r_{medv}} V_p n_p dr_p = \frac{1}{2} \int_0^{\infty} V_p n_p dr_p \quad (4.7)$$

El proceso de densificación, que se manifiesta como un incremento en la densidad del combustible debido a la reducción del tamaño y concentración de los poros, se puede explicar a partir de los defectos puntuales que migran a través de la red cristalina del óxido y el flujo neto de defectos que se establece en la superficie de los poros. Los defectos puntuales pueden tener un origen térmico o pueden generarse por irradiación, y pueden ser capturados por poros así como por otros defectos presentes en la microestructura, como por ejemplo, dislocaciones y bordes de grano. Además, las vacancias e intersticiales pueden recombinarse mutuamente si se encuentran lo suficientemente cerca entre ellos. El modelo desarrollado [6] supone que la evolución del tamaño de los poros está controlada por el flujo neto de vacancias e intersticiales hacia y desde los diferentes sumideros y fuentes de defectos puntuales. La competencia entre estos mecanismos produce, como resultado neto, la reducción de la porosidad y por ende la densificación del material, al menos durante las primeras instancias del proceso hasta que se alcanza una condición de saturación. Si además de la temperatura está presente la irradiación, el efecto de hinchamiento se hace evidente, contrarrestando y finalmente superando al de densificación.

Las hipótesis en las que se basa el modelo se enumeran en los párrafos siguientes. Se tienen en cuenta los efectos combinados de la temperatura y la irradiación de tal forma que el análisis de los casos bajo el efecto exclusivo de la temperatura se realizará simplemente suprimiendo los efectos de la irradiación.

- En cada evento de fisión del ^{235}U se generan dos fragmentos de fisión y 2 o 3 neutrones. Los fragmentos pierden su alta energía inicial al colisionar con los átomos de la red que

son desplazados de sus posiciones normales. Esto hace que, a lo largo del trayecto de cada fragmento, se generen una gran cantidad de vacancias e intersticiales, la mayoría de los cuales se recombinan y alrededor de un 10 % queda disponible para poder migrar a través de la red cristalina [1, 14].

- Las dislocaciones, los bordes de grano y las superficies de los poros pueden emitir vacancias, pero no intersticiales.
- Los defectos puntuales se suponen del tipo Schottky, es decir, cada defecto consiste en un catión de uranio y dos aniones de oxígeno de modo que se satisface la relación estequiométrica para el UO_2 .
- Los poros se expanden al absorber vacancias, pero se contraen cuando liberan intersticiales o capturan vacancias.
- En la superficie de un poro se establece una diferencia de presión (ΔP) dada por la presión interna, generada por los gases atrapados durante el sinterizado en la manufactura del combustible, la tensión superficial y la presión hidrostática externa. Esto influye en el cambio volumétrico que puede sufrir el poro, en especial si se trata de un poro intergranular [6]. Sin embargo, es necesario aclarar que el modelo no contempla un incremento en la presión interna del poro producto de la acumulación de gases de fisión, ya que se consideran despreciables para los niveles de quemado en el que la densificación es predominante.
- Si un fragmento de fisión o *spike* pasa lo suficientemente cerca de un poro, este provoca la emisión de vacancias desde el poro hacia la red [15-17].
- El trepamiento de una dislocación se produce como consecuencia de su interacción con defectos puntuales.

La concentración de vacancias (C_v) e intersticiales (C_i) se calcula a partir del balance de los siguientes efectos:

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = \begin{cases} \text{generación de defectos puntuales por irradiación} \\ +\text{generación de vacancias por interacción poro-}spike \\ +\text{generación de vacancias por dislocaciones y bordes de grano} \\ -\text{captura de vacancias por poros, dislocaciones y bordes de grano} \\ -\text{recombinación entre vacancias e intersticiales} \end{cases} \quad (4.8)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \begin{cases} \text{generación de defectos puntuales por irradiación} \\ -\text{captura de intersticiales por poros, dislocaciones y bordes de grano} \\ -\text{recombinación entre vacancias e intersticiales} \end{cases} \quad (4.9)$$

Los procesos descritos anteriormente están gobernados por la autodifusión de los defectos puntuales en la red del UO_2 , esto incluye tanto a la difusión en volumen como en borde de grano. En este trabajo, la autodifusión se aproxima como la superposición de los mecanismos de vacancias e intersticiales, que son los defectos puntuales considerados, tal que para el uranio es:

$$D_U \approx D_v C_v + D_i C_i \quad (4.10)$$

en donde D_v , D_i , C_v , C_i son los coeficientes de difusión y las concentraciones de vacancias e intersticiales, respectivamente.

En la literatura abierta, existe una gran cantidad de datos experimentales en relación a los coeficientes de autodifusión para el dióxido de uranio [18-26], sin embargo, los valores medidos muestran una dispersión considerable que puede deberse a diversos factores, como por ejemplo, el uso de métodos en rangos temperatura no comparables, muestras con diferentes microestructuras tanto en tamaño de grano como en porosidad total y tipo de poros presentes, presencia de impurezas, entre otros. Un estudio comparativo de estos datos se realizó previamente [7] y a partir de un subconjunto de ensayos de re-sinterizado se ajustaron los siguientes coeficientes de autodifusión en volumen (D_U) y en borde de grano (D_{UBG}):

$$D_U [\text{m}^2/\text{s}] = 4.3 \times 10^{-8} \exp\left(-\frac{3.79 [\text{eV}]}{k_b T}\right) \quad (4.11)$$

$$D_{UBG} [\text{m}^2/\text{s}] = \begin{cases} 3.07 \times 10^{-6} \exp\left(-\frac{3.05 [\text{eV}]}{k_b T}\right) & T < 1973\text{K} \\ 2.15 \times 10^{-2} \exp\left(-\frac{3.79 [\text{eV}]}{k_b T}\right) & T \geq 1973\text{K} \end{cases} \quad (4.12)$$

en donde, k_b es la constante de Boltzmann y T es la temperatura absoluta.

Además, Matzke [21] observó que cuando el dióxido de uranio se somete a condiciones de irradiación, la autodifusión en volumen aumenta considerablemente. A partir de esto, el coeficiente de autodifusión en volumen se evalúa como la superposición del efecto térmico, que predomina a altas temperaturas, y un efecto balístico que depende linealmente con la tasa de fisiones, tal que:

$$D_U [\text{m}^2/\text{s}] = 1.2 \times 10^{-39} \dot{F} + 4.3 \times 10^{-8} \exp\left(-\frac{3.79 [\text{eV}]}{k_b T}\right) \quad (4.13)$$

en donde \dot{F} es la tasa de fisiones dada en $[\text{fis}/\text{m}^3\text{s}]$.

El coeficiente de difusión de intersticiales en volumen puede evaluarse como:

$$D_i = \left(\frac{a}{2}\right)^2 \nu_i \exp\left(-\frac{E_{im}}{k_b T}\right) \quad (4.14)$$

en donde a es el parámetro de red, que para el UO_2 es igual a 5.47×10^{-10} [m], E_{im} es la energía de migración de los intersticiales que se estima entre 0.5 y 2.0 [eV] y $\nu_i = 10^{13}$ [1/s] es la frecuencia de saltos intersticiales [27, 28].

Además de los coeficientes de autodifusión dados anteriormente, un número considerable de parámetros microestructurales, como por ejemplo, la fuerza de los distintos sumideros y fuentes, el radio de captura espontánea de intersticiales y vacancias por dislocaciones, la concentración de vacancias en la superficie de un poro, la densidad de dislocaciones, entre otros, necesitan ser evaluados para predecir el cambio dimensional de la pastilla combustible.

Las tasas de cambio del radio de los poros intragranulares ($\partial r_p^a/\partial t$) e intergranulares ($\partial r_p^e/\partial t$) siguen cinéticas diferentes entre sí debido a la contribución de la difusión en borde de grano en el análisis de los poros intergranulares:

$$\frac{\partial r_p^a}{\partial t} = \frac{1}{r_p^a f_V} \left[D_v (C_v - C_v^{eq}) - D_i C_i - \frac{(r_p^a + r_{int})^2}{2r_p^a} \Omega \dot{F} \eta \lambda f_{sat} f_{vl}^a \right] \quad (4.15)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial r_p^e}{\partial t} &= \frac{1}{r_p^e f_V} \left[D_v (C_v - C_v^{eq}) - D_i C_i - \frac{(r_p^e + r_{int})^2}{2r_p^e} \Omega \dot{F} \eta \lambda f_{sat} f_{vl}^e f_{lim} \right. \\ &= \left. +w D_{UBG} \frac{\Omega \Delta P^e}{r_p^e k_b T} \right] \end{aligned} \quad (4.16)$$

en donde los subíndices a y e corresponden a poros intra- e intergranulares, respectivamente, C_v^{eq} es la concentración de vacancias en equilibrio termodinámico, r_{int} es el rango de interacción entre un poro y un fragmento de fisión, $\Omega = 4.09 \times 10^{-29}$ [m³] es el volumen de la celda unidad del UO₂, η es la cantidad de vacancias que un poro puede emitir al interactuar con un fragmento de fisión, λ es la distancia neta que recorre un fragmento de fisión antes de perder su energía, f_{sat} toma valores entre 0 y 1 y mide la capacidad que tiene la red cristalina de aceptar vacancias que se emiten desde un poro, f_{vl} es la fracción volumétrica de vacancias dentro de un poro, f_{lim} es una función con valor entre 0 y 1 que representa un límite para la emisión de vacancias dependiendo el tamaño del poro y $w = 10^{-9}$ [m] es el ancho del borde de grano en UO₂.

Bajo condiciones exclusivamente térmicas, es decir, sin irradiación, se probó previamente [7] que la concentración de los defectos puntuales toman valores cercanos a los del equilibrio termodinámico y se cumple que $C_i \ll C_v$. Es por esto que para simular ensayos de re-sinterizado se desprecia el efecto de los intersticiales simplificando las ecuaciones (4.8), (4.15) y (4.16).

Para cuantificar la densificación se puede usar simplemente el cambio de densidad ($\Delta\delta$), el cambio relativo de densidad ($\Delta\delta/\delta_0$) o el cambio relativo de volumen ($\Delta V/V_0$):

$$\left(\frac{\Delta\delta}{\delta_0} \right)_{dens} = \frac{-\Delta V/V_0}{1 + \Delta V/V_0} \quad (4.17)$$

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0} \right)_{dens} = - \sum_{j=1}^n P_{0j}^a \left[1 - \left(\frac{r_{fj}^a}{r_{0j}^a} \right)^3 \right] - \sum_{l=1}^m P_{0l}^e \left[1 - \left(\frac{r_{fl}^e}{r_{0l}^e} \right)^3 \right] \quad (4.18)$$

en donde δ_0 y V_0 son la densidad y volumen inicial de fabricación, n y m corresponden a la cantidad de clases de poros intra (“ a ”)- e intergranulares (“ e ”), respectivamente, $P_0^{(a,e)}$ corresponde a la porosidad inicial de cada clase y $r_0^{(a,e)}$ y $r_f^{(a,e)}$ son los radios de los poros de una determinada clase inicial y final, respectivamente.

Todas las ecuaciones y expresiones utilizadas en el modelo de densificación pueden consultarse hacia el final de esta sección. Una explicación detallada de los fenómenos involucrados y las hipótesis del modelo pueden encontrarse en Cazado y Denis [6] y Cazado [7].

4.1.2. Aspectos de la implementación en el código DIONISIO

La implementación del modelo de densificación en el código DIONISIO se realizó siguiendo algunas consideraciones que se describen en esta sección.

Recordando lo descrito previamente, en relación a la discretización espacial del dominio pastilla-gap-vaina, el modelo de densificación se aplica a cada elemento finito de la pastilla combustible, que va a estar definido por una temperatura y tasa de fisión promedios. Como resultado de este modelo, se obtiene la variación dimensional que el proceso de densificación produce y la variable pertinente se transfiere al modelo mecánico que será el encargado de calcular los desplazamientos de los nodos de los elementos y finalmente la variación geométrica total del sistema debido a la superposición de todos los fenómenos involucrados.

Tabla 4.1: Posibles distribuciones consideradas en el modelo

tipo de distribución		tipo de poros	condición numérica
monomodal	D11	100 % intra	$R_{95} < 0.2R_g$
	D12	100 % inter	$R_{medvT} \geq 0.5R_g$
	D13	20 % intra y 80 % inter	en cualquier otro caso
	D14 ¹	intra e inter	$R_{95} \geq 0.2R_g$ & $R_{medvT} < 0.2R_g$
bimodal	D21	100 % intra	$R_{195} < 0.2R_g$ & $R_{295} < 0.2R_g$
	D22	100 % inter	$R_{med1} \geq 0.5R_g$ & $R_{med2} \geq 0.5R_g$
	D23	moda 1: 100 % intra moda 2: 100 % inter	$R_{195} < 0.2R_g$ & $R_{med2} \geq 0.5R_g$
	D24	moda 1: 50 % intra y 50 % inter moda 2: 100 % inter	en cualquier otro caso
trimodal	D31	moda 1: 100 % intra moda 2 y 3: 100 % inter	$R_{195} < 0.2R_g$
	D32	100 % inter	en cualquier otro caso

Un aspecto importante del modelo de densificación es conocer *a priori* la distribución

¹Observación: la diferencia principal entre la distribución D13 y D14, es que para D14 el radio característico de la primera clase de poros intergranular es la siguiente a la última clase de poros intragranulares, es decir que los tipos de poros no se superponen, mientras que en D13 los poros más pequeños pueden estar ubicados tanto en el borde entre grano como a su interior.

de porosidad de fabricación del combustible a simular. A partir de los datos microestructurales de los combustibles, por ejemplo, tamaño de grano, tipo de estructura de poros (monomodal, bimodal o trimodal), porosidad y mediana del radio en volumen de poro, el código construye una distribución de poros con un determinado número de clases caracterizados por el radio del poro, concentración y porosidad. Las posibles distribuciones que el código es capaz de construir y evaluar al momento de la escritura de este documento son las indicadas en la Tabla 4.1.

En la Tabla 4.1, R_{95} corresponde al radio percentil 95 % para una distribución monomodal, es decir al radio para el cuál se tiene el 95 % de porosidad de la muestra, R_{medT} es la mediana en volumen del radio de una distribución monomodal (o el radio percentil 50 %) y R_g es el radio promedio de grano. Similarmente, R_{195} , R_{295} , R_{med1} y R_{med2} describen los correspondientes radios para las modas 1 y 2 de una distribución multimodal.

Esta información no está siempre disponible con el nivel de detalle requerido por el modelo. De la extensa cantidad de datos informados en los experimentos de Brite et al. [8], Harada y Doi [9], Assmann y Stehle [15] y Maier et al. [29], se pueden distinguir dos tipos generales de combustibles, los denominados inestables, es decir, aquellos que van a sufrir una densificación apreciable durante la irradiación y los estables, o aquellos cuya densificación es despreciable. Los combustibles inestables suelen caracterizarse por presentar poros y tamaños de granos pequeños ($R_g \leq 5.0 [\mu m]$), mientras que los estables suelen presentar poros grandes y poblaciones de poros grandes e intergranulares en gran medida. Es por esto, que cuando no se tiene la descripción detallada de la porosidad de fabricación, DIONISIO tiene la opción de elegir entre dos tipos de distribución precargadas dependiendo del tamaño promedio de grano, cuyo valor suele reportarse en los informes de los experimentos. En la Tabla 4.2 se encuentran los parámetros característicos de las distribuciones precargadas en el código, que fueron elegidos en base a la extensa cantidad de datos experimentales analizados.

Tabla 4.2: Características de las distribuciones de porosidad precargadas en DIONISIO

tipo	condición numérica	parámetros
inestable - monomodal	$R_g \leq 10 [\mu m]$	$R_{medT} = 2.0 [\mu m]$
estable - bimodal	$R_g > 10 [\mu m]$	$R_{med1} = 2.0 [\mu m]$ $R_{med2} = 15.0 [\mu m]$ $P_1 = 0.2 \cdot P_{total}$ $P_2 = 0.8 \cdot P_{total}$

En cada elemento finito se calcula la evolución de la concentración de defectos puntuales y de los radios de cada clase de poro. Para ello, las ec. (4.8), (4.9), (4.15) y (4.16) deben resolverse numéricamente y de forma iterativa ya que las variables involucradas en el sistema de ecuaciones que se genera están acopladas entre sí. La elección del paso temporal es muy importante y en los sistemas acoplados con resolución explícita se requieren pasos muy pequeños, del orden de los segundos o milisegundos, lo cuál aumentaría el costo

computacional enormemente teniendo en cuenta que en DIONISIO es del orden de los días. Para tomar pasos de tiempo acordes a los empleados en el código, se resuelven las ec. (4.8) y (4.9) por el método de Euler implícito y las ec. (4.8) y (4.9) por el método de Runge-Kutta de cuarto orden [30].

Un parámetro importante, que debe calcularse de manera iterativa con el sistema de ecuaciones mencionado anteriormente, es el coeficiente de difusión de vacancias en volumen (D_v). Esto se hace a partir de las ec. (4.10), (4.14), (4.8) y (4.9).

4.1.3. Evaluación del modelo de densificación

El modelo descrito en la sección 4.1.1 fue sometido a una gran cantidad de pruebas, de manera independiente al código DIONISIO, con el objetivo de optimizar los parámetros involucrados. Este estudio reveló la importancia de contar con una correcta descripción de la distribución inicial de porosidad. Además, se realizaron las primeras comparaciones del modelo como subrutina de DIONISIO obteniendo resultados preliminares prometedores. A continuación, se presenta una extensa validación del modelo, tanto en condiciones de irradiación como en recocidos isotérmicos, utilizando DIONISIO y el módulo WIRR.

Validación en condiciones de irradiación

Se utilizó la versión de producción de DIONISIO para simular los experimentos bajo irradiación realizados durante el programa *EEI/EPRI Fuel Densification Project* [8]. Las simulaciones se realizaron con el modelo de densificación acoplado a los modelos de *swelling*, de crecimiento de grano, de expansión térmica y a los regímenes elásticos y plásticos, entre otros.

Durante estos experimentos, la máxima potencia lineal se mantuvo alrededor de 310.0 [W/cm] de modo que la temperatura central de las pastillas no excediera los 1673 [K]. La restricción impuesta a la potencia tuvo como objetivo limitar el efecto del *swelling* y, por lo tanto, asegurar el efecto dominando de la densificación. La densidad final de las pastillas se midió en celdas calientes por medio de un picnómetro de mercurio. Dado que no se disponía de información detallada sobre la historia de potencia, para realizar las simulaciones se supuso una potencia constante igual a la proporcionada en el informe técnico [8]. Las características principales de las microestructuras empleadas se encuentran en la tabla 4.3. Los valores de porosidad indicados corresponden a los medidos por microscopía óptica y electrónica de barrido.

Las pastillas combustibles indicadas con números en la Tabla 4.3 tenían 1.02 [cm] de largo, 0.92 [cm] de diámetro, *dishing* en ambos extremos y poseían un enriquecimiento de 3.52 % en peso de ^{235}U . Las muestras identificadas con letras tenían un diámetro de pastilla de 0.92 [cm] con una relación L/D que oscilaba entre 1.0 y 1.5 y un enriquecimiento entre 2.85 y 4.94 % en peso de ^{235}U . Dado que para estas muestras no se informaron especificaciones precisas, en este trabajo se eligió una relación L/D igual a la de las

muestras identificadas con números y se adoptó un enriquecimiento promedio de 3.90 %.

Tabla 4.3: Características principales de las distribuciones de porosidad informadas en Brite et al. [8]

tipo ²	R_g [μm]	Porosidad total		r_{medv} [μm]	
		$r_p < 0.5$ [μm]	$r_p > 0.5$ [μm]	$r_p < 0.5$ [μm]	$r_p > 0.5$ [μm]
1	1.50	6.30	1.30	0.20	1.00
2	2.00	6.80	2.40	0.30	1.50
3	7.00	1.2	4.10	0.35	0.75
4	2.50	6.30	0.60	0.25	1.00
5	8.00	1.50	7.20	0.20	6.50
6	11.00	1.90	5.00	0.30	4.50
7	12.00	1.80	5.70	0.30	15.0
8	11.50	1.50	1.30	0.30	1.05
9	14.50	2.10	1.80	0.30	0.85
A	5.00	1.60	3.90	0.20	17.50
BSP	7.00	2.00	3.00	0.30	12.00
C	8.50	–	6.00	–	11.00
D	16.50	1.90	6.70	0.30	5.50
E	9.50	1.70	8.90	0.20	24.50
F	4.00	3.80	3.70	0.25	1.25
H	3.00	4.50	7.00	0.30	0.80
N	2.00	7.00	1.70	0.20	1.00
GKO	5.00	–	2.10	–	0.80
IU	10.00	–	5.70	–	17.00
M	5.00	–	2.90	–	1.60

La Figura 4.2 muestra los resultados de la simulación de un combustible Tipo 4, con una porosidad promedio inicial de 7.30 %, irradiado con una potencia lineal media de 291 [W/cm] durante 1629 [h] hasta alcanzar un quemado de 3300 [MWd/tU]. Por un lado, se observa en a) que bajo estas condiciones, el hinchamiento tiene un efecto menor en comparación con la densificación y ambos efectos conducen a un valor consistente con la medida experimental reportada. En el informe de referencia, Brite et al. [8] proporciona una estimación general de 0.70 % para el hinchamiento, lo que se encuentra en acuerdo con el valor de 0.71 % calculado en este trabajo. Por otro lado, se puede observar que la temperatura calculada durante la irradiación presenta un aumento continuo desde 1380 [K] hasta alcanzar un valor aproximado de 1690 [K]. Este efecto se debe a que a medida que la densificación avanza, el *gap* entre la pastilla y la vaina aumenta, lo que deteriora la capacidad de extracción de calor hacia el refrigerante. En línea de trazo negra se marca el valor de la temperatura central para este experimento de 1541 [K], el cual se encuentra en el rango de temperatura simulado. En la Figura 4.2 b) se muestra una comparación entre los efectos de la resinterización y de la irradiación. Tomando como referencia la distribución de porosidad de fabricación calculada (—■—), se simula un test isotérmico

²Algunas características de los combustibles tipo GKO, IU y M no se encontraban informadas en los reportes de referencia. Los valores indicados fueron tomados sobre la base de microestructuras similares.

a 1973 [K] durante 48 horas y un test bajo irradiación con las condiciones mencionadas previamente. Junto a la curva de porosidad de fabricación se muestran los resultados obtenidos para el ensayo de resinterizado (—●—) y bajo condiciones de irradiación (—▲—). A partir de estos resultados, se puede calcular una disminución de la porosidad total del 4.9 % para el caso isotérmico y 5.4 % en el caso con irradiación, lo cual es consistente con los resultados experimentales bajo condiciones idénticas: 4.8 % y 5.22 %, respectivamente. En ambos casos se verifica una fuerte disminución en la población con poros con radio menor que 0.5 [μm] teniendo buen acuerdo con las observaciones experimentales [8]. Es importante aclarar que si bien los niveles de porosidad alcanzados en ambos tratamientos son similares, la temperatura central media para el caso con irradiación es de aproximadamente 1573 [K], lo que significa 400 [K] inferior a la del tratamiento isotérmico. Este comportamiento se atribuye principalmente al aumento de la difusión atómica debida a la irradiación como se indicó en 4.1.1 y fue estudiado en el extenso trabajo realizado por Brite et al. [8].

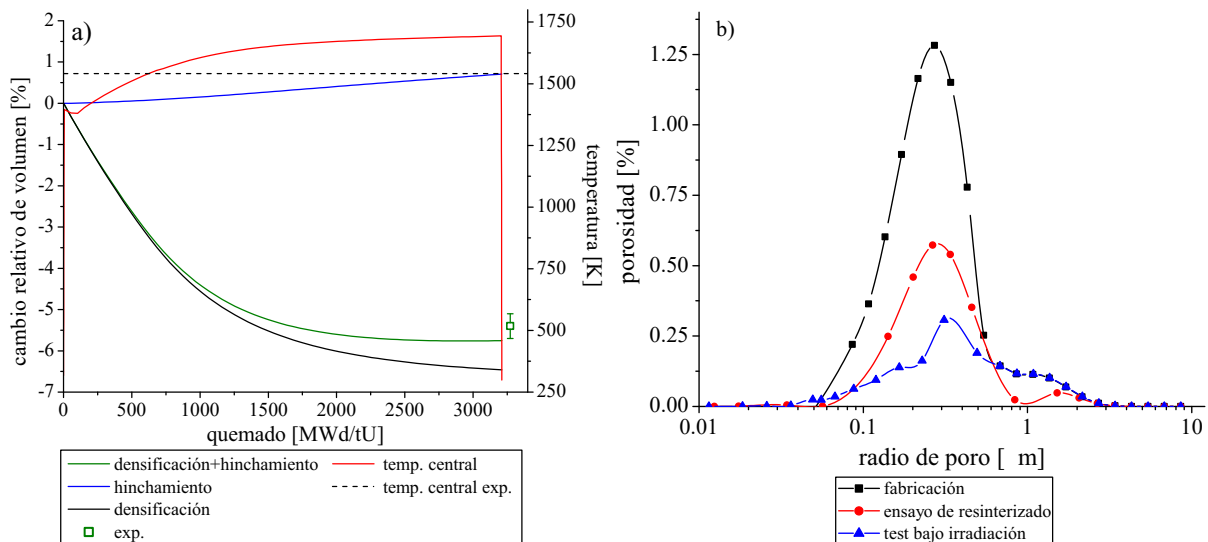


Figura 4.2: a) Efectos de la densificación y el hinchamiento en conjunto con la evolución de la temperatura central para un combustible Tipo 4 irradiado hasta un quemado de 3300 [MWd/tU] [8]. b) Simulación de la distribución de porosidad inicial y comparación con las distribuciones calculadas en un test de resinterizado y bajo irradiación.

En la Figura 4.3 se observa la porosidad remanente en una pastilla del combustible Tipo 4 bajo condiciones idénticas a las indicadas anteriormente. Debido a la simetría con respecto al plano medio de la pastilla, solo se representa una proyección 2D de media pastilla con gap y vaina. Se puede apreciar una reducción considerable de la porosidad alcanzando valores aproximados de 1.4 % en el borde de la pastilla y 3.4 % en el centro de la misma. Esta diferencia puede atribuirse al efecto del *swelling* debido al gradiente de temperatura en el que se genera, en esta etapa de bajo quemado, una mayor cantidad de gases de fisión en el centro. Es importante señalar que el efecto conjunto de la densificación y el hinchamiento en la porosidad remanente no estaba presente en los resultados

presentados previamente [6, 7].

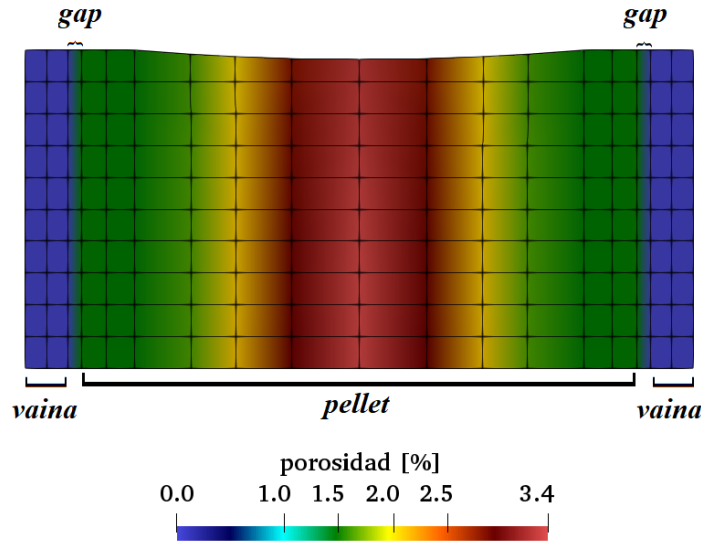


Figura 4.3: Distribución de porosidad para un combustible Tipo 4 irradiado hasta un quemado de 3300 [MWd/tU] [8].

En la Figura 4.4 se presenta la comparación entre la densificación calculada y la experimental, como variación de densidad en porcentaje de densidad teórica ($\Delta\delta$ [% TD]), para una gran variedad de microestructuras. Experimentalmente, el combustible fue irradiado durante 446 y 1629 horas alcanzando temperaturas entre 573 [K] y 1598 [K]. A pesar de algunas desviaciones notables, las simulaciones tienen un buen acuerdo con los experimentos, ya que alrededor del 60 % de los casos simulados muestran una desviación menor al 1 [% TD] con respecto a la línea de acuerdo perfecto. Las desviaciones más importantes ocurren para la microestructura identificada como Tipo 3. A pesar de la gran población de poros pequeños, $r_{medv} = 0.65$ [μm], experimentalmente, estas pastillas presentaron muy poca densificación o incluso hinchamiento que puede deberse a un gran tamaño de grano (14 [μm]). Sin embargo, las simulaciones realizadas predicen valores significativos de densificación en la mayoría de estos casos. Este comportamiento puede deberse a que en el coeficiente de autodifusión utilizado la contribución de la irradiación excede a la del término térmico en al menos un orden de magnitud para temperaturas por debajo de 1500 [K] (rango típico para estos experimentos), aumentando la movilidad de los defectos puntuales y sobrepasando el efecto que tiene el tamaño de grano en la densificación. A pesar de que un estudio basado en dinámica molecular [31] ha demostrado que la componente balística producto de la irradiación en la autodifusión depende de la temperatura, aún no se ha establecido una correlación clara. Además, para los casos identificados como tipo 5, 6, 8, 9 y BPS se obtuvieron valores de densificación superiores a los medidos experimentalmente. Estas microestructuras presentaron una distribución de porosidad bimodal. La discriminación, usada en el informe técnico, entre poros pequeños y grandes se hizo a partir de la resolución de los métodos de observación, por debajo de 1 [μm] de diámetro

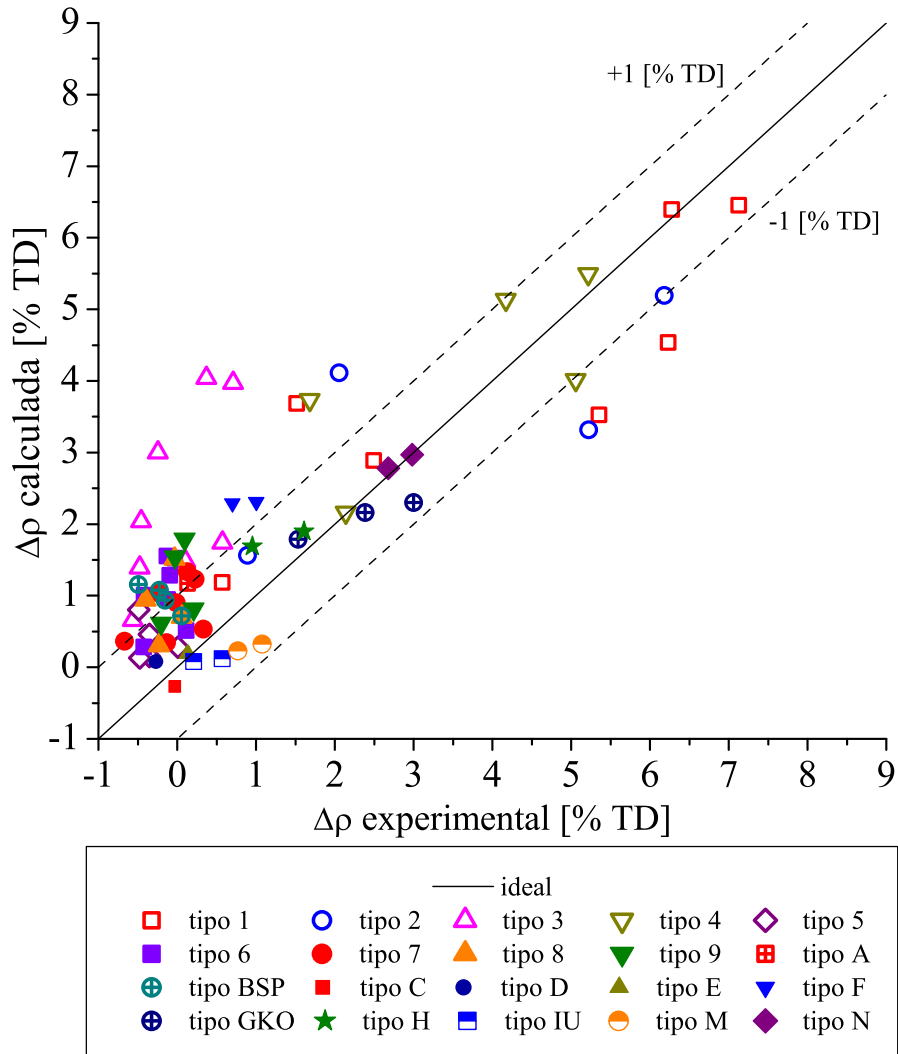


Figura 4.4: Comparación entre la densificación simulada y medida para diferentes microestructuras en los experimentos informados por Brite et al. [8].

se contaron por SEM y por arriba de ese valor por microscopía óptica. No obstante, este valor de diámetro para realizar la separación no es necesariamente el diámetro para el cual las dos poblaciones de poros se separan, por lo que considerar que la mediana del radio para cada población es la mediana del radio informada puede ocasionar que en el modelo se esté considerando una población de poros pequeños mayor a la observada y, entonces, simulando una mayor densificación. Lamentablemente, no se contó con un detalle de la distribución de porosidad experimental para estos casos que pudiera ser útil para ajustar la distribución inicial. Por otro lado, cabe destacar que los coeficientes de difusión utilizados en el modelo surgen a partir de mediciones realizadas en muestras policristalinas en las que el tamaño de grano pequeño y, en consecuencia, la alta densidad de bordes de grano contribuyen a la migración de defectos [32]. Este efecto, que no está corregido en el modelo para tamaños de grano grandes, junto a las simplificaciones numéricas realizadas pueden contribuir a explicar las desviaciones observadas.

Para mostrar la mejora que el nuevo modelo de densificación introduce al código

DIONISIO, en la Figura 4.5 se presenta una comparación entre algunos datos experimentales y el modelo previo y nuevo utilizado en el código. Las muestras fueron irradiadas con una potencia lineal entre 151 y 302 [W/cm] durante 1629 horas, excepto para la muestra tipo 7 cuyo ensayo duró 446 horas. En términos generales, con el modelo de densificación actual se observa una mejora en la respuesta del código con respecto a la versión anterior. Se puede observar que con el modelo previo, la saturación del proceso de densificación se produce a aproximadamente 1000 [MWd/tU], mientras que con el modelo microestructural incorporado la densificación sigue siendo dominante hasta uno 3000 [MWd/tU], lo cual es consistente con la evidencia experimental recolectada por Brite et al. [8].

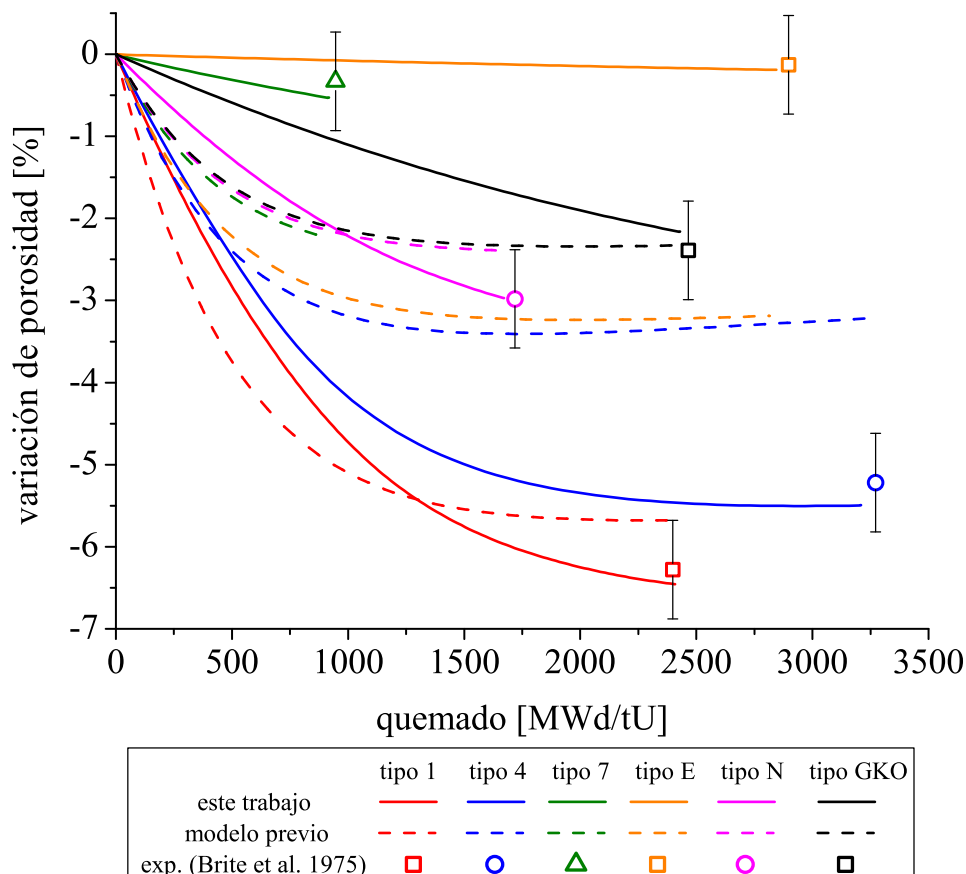


Figura 4.5: Comparación entre los datos experimentales de densificación de Brite et al. [8] y las simulaciones realizadas con DIONISIO; las líneas sólidas y de trazos corresponden a los modelos nuevo y previo, respectivamente.

En la Figura 4.6 se comparan los resultados de la densificación correspondiente a mediciones en las muestras identificadas con números con las simulaciones realizadas con DIONISIO y con el modelo presentado por Dollins [14]. Se puede observar que las predicciones de ambos modelos son superiores a los valores medidos para *pellets* con baja densificación. Sin embargo, con el modelo actual cerca del 60% de los resultados se encuentran dentro de una banda de $\pm 1\%$ alrededor de la línea de acuerdo perfecto, mientras que con el otro modelo solo el 25% de ellos se encuentran dentro de este rango. La principal diferencia entre ambos enfoques es que Dollins [14] evalúa la densificación suponiendo una sola clase de poros mientras que en este trabajo se utiliza una distribución de tamaños

de poros, ya que a diferente tamaño la cinética del proceso cambia.

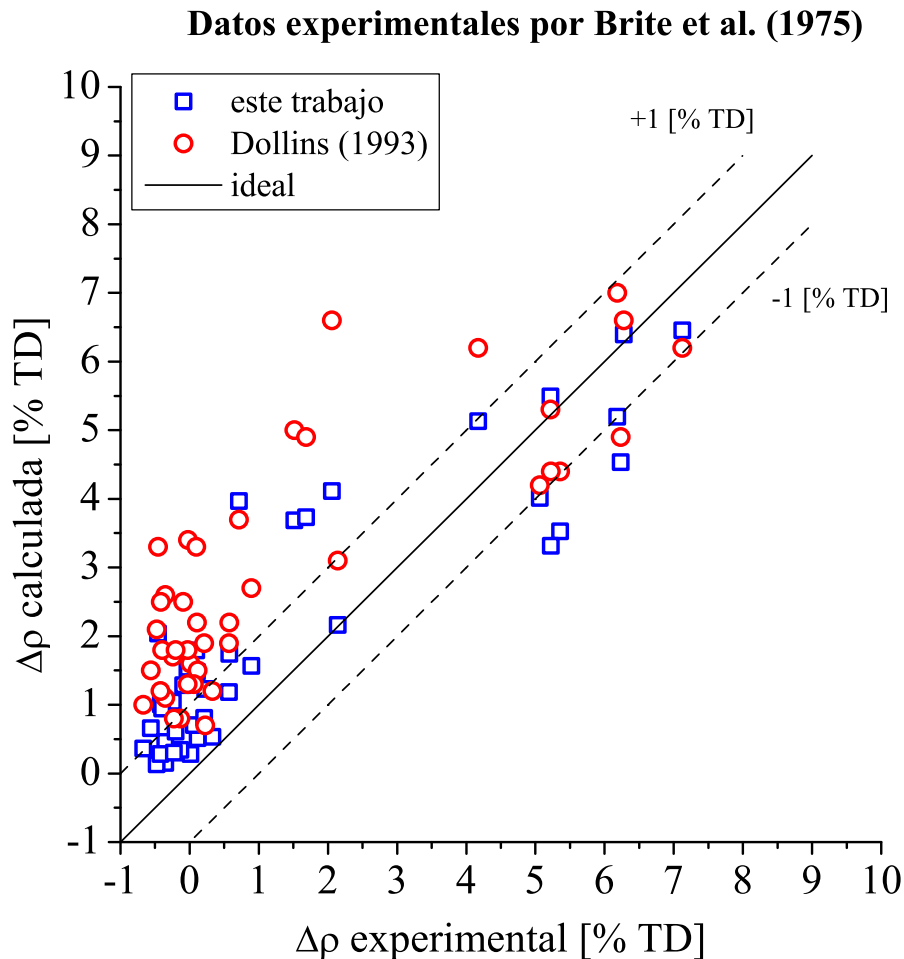


Figura 4.6: Comparación entre la densificación alcanzada en muestras irradiadas y los cálculos realizados con el modelo de Dollins [14] y el presentado en la sección 4.1.1.

Además, se utilizó DIONISIO para simular los experimentos realizados por Small [33] y Banks [5] bajo una variedad de condiciones de irradiación. Los resultados informados por Small [33] se obtuvieron en pastillas combustibles de UO_2 irradiadas en el “Reactor Harwell para el testeo de materiales” con potencias lineales entre 250 y 350 [W/cm], alcanzando temperaturas centrales máximas entre 1125 y 1605 [K] y quemados entre 900 y 2571 [MWd/tU]. La presión del refrigerante fue de 6.9 [MPa] y las temperaturas de entrada y salida fueron de 513 y 543 [K], respectivamente. Cada barra contenía 31 *pellets* con 1.54 % de ^{235}U de enriquecimiento. Las distribuciones de porosidad se midieron antes y después de la irradiación por medio de microscopía óptica y SEM. La microestructura inicial se caracterizó por una distribución monomodal con un tamaño de grano promedio de 3.7 [μm] y una porosidad de 3.52 % con una mediana del radio en volumen de 0.30 [μm].

En la Tabla 4.4 se muestra una comparación realizada entre medidas de densificación informadas por Small [33] y las simulaciones llevadas a cabo con DIONISIO. Se tomaron en cuenta tres parámetros para la comparación: quemado, temperatura central máxima

Tabla 4.4: Comparación entre los resultados experimentales de Small [33] y los calculados mediante el código DIONISIO

ID	quemado [MWd/tU]		temperatura central máxima [K]		variación de porosidad [%]	
	exp.	sim.	exp.	sim.	exp.	sim.
1141/1	1700	1664	1125	1222	-2.32	-1.84
1141/2	2571	2638	1258	1281	-1.55	-1.91
1141/3	900	912	1176	1293	-1.35	-1.46
1141/7	2100	2335	1605	1592	-1.08	-1.74

y variación de porosidad. En general, las simulaciones numéricas presentan buen acuerdo con los datos experimentales. Las desviaciones más importantes se encuentran para las muestras identificadas como 1141/1 y 7. Esto podría deberse a que las barras contenían pastillas huecas en los tercios superior e inferior. DIONISIO puede contemplar pastillas hueca y sólidas, pero supone un tipo u otro en todo el largo de la barra.

Los datos proporcionados por Banks [5] consistieron en porosidad final medida en pastillas combustibles sólida y huecas de UO_2 irradiadas entre 16 y 560 [W/cm], alcanzando quemados entre 0.4 y 15.2 [MWd/kgU]. Todas las barras combustibles contenían pastillas

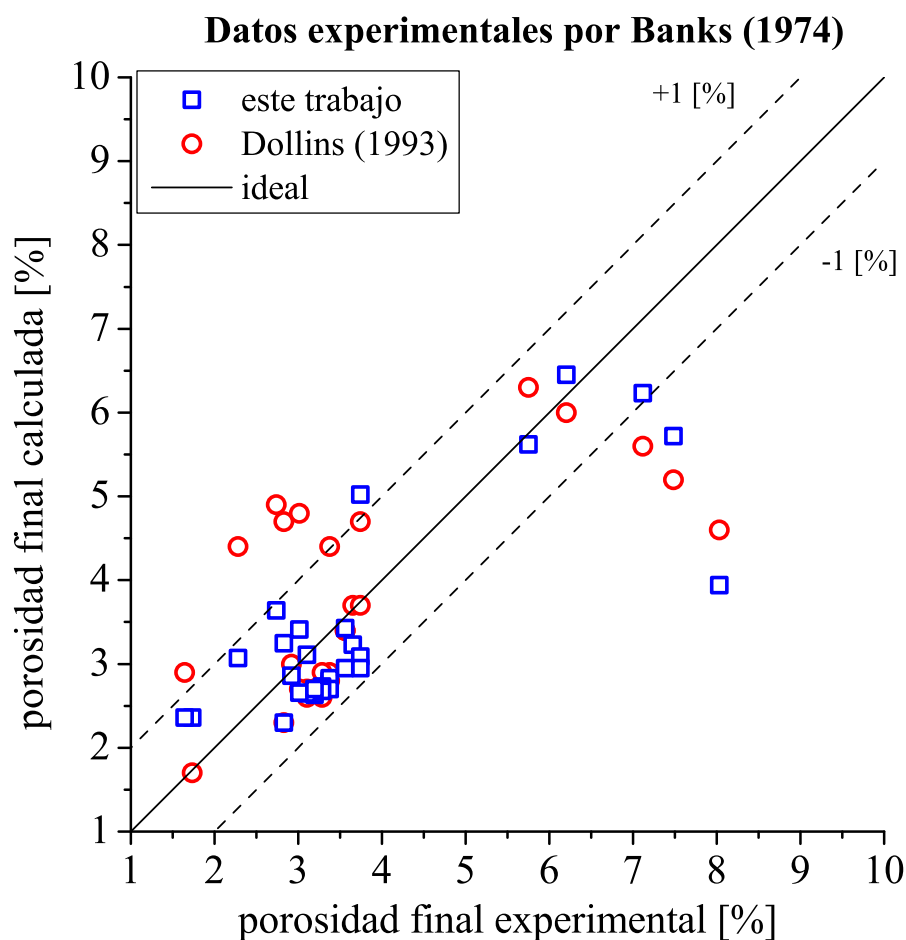


Figura 4.7: Comparación entre la porosidad final en muestras irradiadas y los cálculos realizados con el modelo de Dollins [14] y el presentado en la sección 4.1.1 para datos informados por Banks [5].

con densidad entre 96.35 y 97.17 [% TD]. De acuerdo con el informe experimental, la porosidad se distribuyó en dos poblaciones: poros con radios inferiores a 1 [μm] y superiores a 5 [μm], pero no se encontraron disponibles más detalles. Del análisis de porosidad en diferentes microestructuras de UO_2 [8, 9, 33], se observa que en distribuciones bimodales la contribución de los poros pequeños en la porosidad total se encuentra en el rango entre 25 y 50 %. A partir de esto, en este trabajo se supuso que los poros pequeños contribuyen con el 40 % del volumen total con una mediana de 0.5 [μm] y el resto de la porosidad corresponde a poros más grandes con una mediana de 10 [μm]. El tamaño de grano se consideró 10 [μm].

En la Figura 4.7 se presenta una comparación entre la porosidad final medida y la calculada por el código DIONISIO y el modelo de Dollins [14] para las muestras reportadas por Banks [5]. Para estas muestras, el comportamiento de DIONISIO es tal que el 90 % de los experimentos testeados se encuentran dentro de la banda de $\pm 1\%$ alrededor de la línea de caso ideal, mientras que las predicciones del modelo de Dollins [14] alcanzan solo el 70 %. Una vez más, la consideración de diferentes clases de poros en la simulación permite realizar simulaciones más realistas, alcanzando mejores resultados.

Validación del modelo térmico de densificación

Una parte importante del comportamiento de los combustibles nucleares suele realizarse fuera de la pila del reactor, que consisten en pruebas sin irradiación ya que los tests dentro de un reactor nuclear son complejos y costosos [34]. Un método elemental para caracterizar pastillas de UO_2 es el test de resinterizado que permite evaluar la estabilidad dimensional de una pastilla luego del sinterizado de fabricación. En este tipo de prueba, la pastilla se somete a un ciclo térmico determinado, usualmente a altas temperaturas en una atmósfera controlada, y luego se mide el cambio de densidad. Los fabricantes de combustibles suelen utilizar estos resultados para estimar la densificación que podría ocurrir durante la operación del reactor.

En esta sección se presentan los resultados obtenidos con el módulo WIRR del código DIONISIO utilizando el modelo térmico de densificación desarrollado.

Maier et al. [29] reportó datos experimentales de variación de densidad para combustibles con microestructuras distintivas a partir de ensayos isotérmicos sin irradiación. Las pastillas combustibles se fabricaron por prensado en frío y bajo una variedad de condiciones de sinterizado para obtener las estructuras de poros que se muestran en la Tabla 4.5, en donde D_g corresponde al tamaño de grano promedio, es decir, dos veces el radio de grano usado en el modelo. Los ensayos de resinterizado consistieron en calentamiento a 1973 [K], en una atmósfera controlada de hidrógeno, durante diferentes tiempos con un máximo de 280 horas. La rampa de calentamiento fue de 1200 [K/h]. Como no se dieron detalles para la rampa de enfriamiento, en este trabajo, se consideró igual a la de calentamiento. Los valores de densidad se midieron usando la técnica de inmersión en

xileno.

Tabla 4.5: Características microestructurales de los combustibles utilizados por Maier et al. [29]

id.	δ promedio [% TD]	D_g [μm]	estructura de poros	r_{mv} [μm]
M-A	93.38 ± 0.20	6.5	monomodal	1.0—1.5
M-B	94.70 ± 0.20	9.5	bimodal	5.0
M-C	96.51 ± 0.20	6.5	monomodal	1.0—1.5
M-D	96.05 ± 0.20	8.5	monomodal	1.0—1.5

En la Figura 4.8 se presenta una comparación entre la evolución en el tiempo de la variación de porosidad medida en los experimentos realizados por Maier et al. [29] y los resultados obtenidos con DIONISIO-WIRR. Los valores de tiempo presentados incluyen la corrección debida a las rampas de calentamiento y enfriamiento durante los ensayos. En un trabajo previo [7] se estableció la importancia de incluir las rampas de calentamiento y enfriamiento en los ensayos de resinterización, especialmente para combustibles con una distribución de porosidad con un gran número de poros pequeños y cuando la temperatura final del ensayo esté por encima de los 1700 [K]. Puede apreciarse que el mayor cambio de porosidad ocurre entre las 20 y 50 horas, a partir de la cual la tasa de reducción de la porosidad disminuye. A pesar de algunas desviaciones que se pueden observar, existe una buena concordancia entre los datos experimentales y los cálculos en la mayoría de los casos.

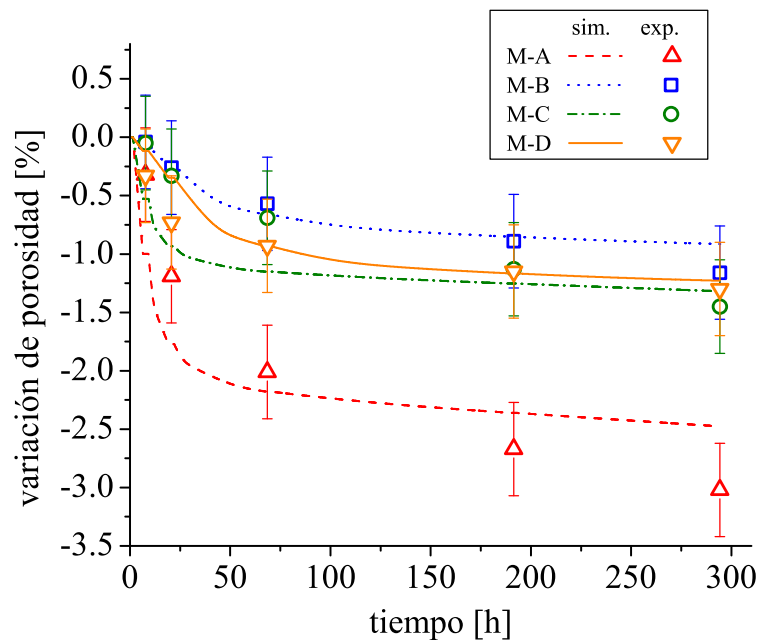


Figura 4.8: Simulación de la evolución de la porosidad para muestras resinterizadas a 1973 [K] hasta 280 [h] en tratamientos isotérmicos y su comparación con datos experimentales [29].

Se pueden observar algunas desviaciones, particularmente para los combustibles identificados como M-A y -C, para los cuales las simulaciones muestran una mayor densificación en las primeras horas de tratamiento con respecto a las medidas experimentales. En la Figura 4.9 se observa la distribución de porosidad inicial de M-A para la cual la simulación alcanza la porosidad total para poros de aproximadamente $2.5 [\mu\text{m}]$ de radio, mientras que experimentalmente ocurre a los $5.0 [\mu\text{m}]$. Este hecho, sumado a que la distribución calculada resultó ser más estrecha que la experimental, puede dar explicaciones de que la densificación simulada se sature rápidamente en el tratamiento isotérmico. Un comportamiento similar ocurre para M-C, aunque no se disponía del detalle de la distribución experimental que pudiera explicar las diferencias observadas.

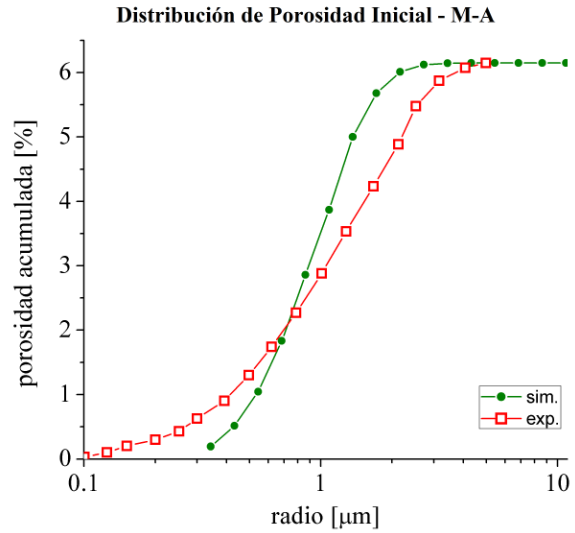


Figura 4.9: Distribución de porosidad inicial para el combustible M-A [29].

Se utilizó DIONISIO-WIRR para simular los ensayos de resinterizados realizados en los combustibles usados en barras instrumentadas de los experimentos (IFA) -431, -432, -527 y -513 [35, 36]. Los *pellets* se fabricaron a partir de polvo de UO_2 enriquecido al 10 % de ^{235}U y se sinterizaron en una atmósfera de hidrógeno y argón. Los diámetros (d_{pel}) y longitudes (L_{pel}) nominales de las pastillas fueron 10.68 mm y 12.70 mm, respectivamente. En estos ensayos se incluyeron combustibles con densidades nominales de 92 [% TD] y 95 [% TD] con diferentes estructuras de poros. En las Tablas 4.6 y 4.7 se encuentran las propiedades microestructurales y geométricas más relevantes de las pastillas combustibles, en donde d_{medv} corresponde a la mediana del diámetro de los poros y d_p es el diámetro del poro en [μm].

Tabla 4.6: Características microestructurales de las pastillas combustibles utilizadas en los experimentos IFA [35, 36]

IFA id.	id.	$D_g [\mu\text{m}]$	Porosidad [%]			$d_{medv} [\mu\text{m}]$		
			$d_p < 1$	$d_p > 1$	$d_p > 10$	$d_p < 1$	$d_p > 1$	$d_p > 10$
431/432	IFA-A	6.0	3.1	4.9	2.4	0.6	8.5	32.0
431/432	IFA-B	10.0	1.6	6.4	5.9	0.3	36.0	36.0
431/432	IFA-C	56.0	0.4	4.6	1.3	0.6	5.1	32.0
513	IFA-D	12.0	0.4	4.6	2.1	0.7	7.3	28.0
527	IFA-E	12.0	0.6	4.4	1.8	0.7	5.6	36.0

Los ensayos isotérmicos para los combustibles usados en IFA-431 y -432 se realizaron

Tabla 4.7: Características geométricas de las pastillas combustibles utilizadas en los experimentos IFA [35, 36]

IFA id.	id.	L_{pel} [cm] $\pm 2\sigma$	d_{pel} [cm] $\pm 2\sigma$	densidad [% TD] $\pm 2\sigma$
431/432	IFA-A	1.296 ± 0.009	1.0679 ± 0.0001	92.10 ± 0.21
431/432	IFA-B	1.288 ± 0.006	1.0678 ± 0.0001	91.80 ± 0.28
431/432	IFA-C	1.283 ± 0.010	1.0642 ± 0.0040	95.70 ± 0.12
513	IFA-D	1.266 ± 0.009	1.0680 ± 0.0010	95.47 ± 0.21
527	IFA-E	1.264 ± 0.010	1.0690 ± 0.0004	95.89 ± 0.17

en cinco condiciones diferentes que combinaban temperatura y tiempo. Para 1873 [K] el tiempo estacionario fue de 24 [h] y para 1973 [K] fueron 4, 7.8, 24 y 48 [h]. Los ensayos se realizaron en atmósfera controlada de Ar–8% H₂ y las rampas de calentamiento y enfriamiento fueron de 300 [K/h]. Para IFA–527 y –513, los ensayos de resinterizado se realizaron en una atmósfera controlada con Ar y He en partes iguales. Durante estas pruebas, la velocidad de calentamiento fue de 150 [K/h] hasta alcanzar 723 [K], luego aumentó a 300 [K/h] hasta llegar a 1973 [K] y se mantuvo a dicha temperatura por 24 [h]. Finalmente, el enfriamiento se realizó a una velocidad de 400 [K/h]. Todas las determinaciones de la densidad de los combustibles se realizaron mediante la técnica de inmersión en agua.

La Tabla 4.8 presenta un resumen de los resultados obtenidos con DIONISIO-WIRR para muestras resinterizadas de los experimentos IFA para diferentes combinaciones de tiempo y temperatura. Para cada tratamiento térmico, los resultados experimentales informados aquí corresponden a la media y la desviación estándar de las medidas tomadas en cuatro pastillas diferentes con microestructuras comparables. En el caso de los tratamientos a 1973 [K] por 48 [h] se utilizaron sólo dos muestras. Los resultados mostrados corresponden al cambio relativo de densidad y diámetro de la pastilla. Se puede apreciar que los *pellets* identificados como IFA-A alcanzaron una mayor densificación que el resto, debido a que la distribución de porosidad de fabricación contenía una gran cantidad de poros pequeños que desaparecen o disminuyen su tamaño a gran velocidad. En la mayoría de los casos, existe un buen acuerdo entre los datos experimentales y los valores obtenidos en las simulaciones.

La Figura 4.10 muestra la evolución de la variación relativa de densidad debida al efecto en conjunto de la expansión térmica y la densificación para una muestra IFA–A durante un tratamiento térmico a una temperatura nominal de 1973 K. La historia del tratamiento correspondiente a dos ciclos de 24 [h] a 1973 [K], según lo informado por Hann et al. [36], se indica mediante la línea de trazo. Durante la primera rampa de calentamiento, la densidad del combustible disminuye debido a la dilatación térmica pero por encima de 1700 [K] se produce un rápido aumento de la densidad como consecuencia de la eliminación o reducción acelerada de pequeños poros, generalmente de diámetro menor

Tabla 4.8: Resultados de las simulaciones de los ensayos de resinterización de combustibles utilizados en los experimentos IFA [35, 36]

id.	tratamiento térmico	$\Delta\delta/\delta_0$ [%]		$-3\Delta d_{pel}/d_{pel_0}$ [%]	
		exp.	sim.	exp.	sim.
IFA/A	1873 [K] -24 [h]	2.53 ± 0.40	2.22	2.32 ± 0.46	2.18
	1973 [K] -4 [h]	2.58 ± 0.25	2.67	2.44 ± 0.25	2.62
	1973 [K] -7.8 [h]	3.03 ± 0.34	2.89	2.82 ± 0.29	2.84
	1973 [K] -24 [h]	3.37 ± 0.37	3.35	3.07 ± 0.34	3.28
	1973 [K] -48 [h]	3.75 ± 0.81	3.68	3.46 ± 0.64	3.59
IFA/B	1873 [K] -24 [h]	0.09 ± 0.10	0.17	0.11 ± 0.09	0.17
	1973 [K] -4 [h]	-0.07 ± 0.32	0.10	0.11 ± 0.17	0.10
	1973 [K] -7.8 [h]	-0.18 ± 0.84	0.18	-0.02 ± 0.71	0.18
	1973 [K] -24 [h]	0.02 ± 0.46	0.42	-0.11 ± 0.27	0.42
	1973 [K] -48 [h]	0.05 ± 1.20	0.65	-0.14 ± 0.86	0.64
IFA/C	1873 [K] -24 [h]	0.04 ± 0.02	0.03	0.02 ± 0.04	0.03
	1973 [K] -4 [h]	0.09 ± 0.04	0.01	0.09 ± 0.04	0.01
	1973 [K] -7.8 [h]	0.24 ± 0.04	0.03	0.16 ± 0.04	0.03
	1973 [K] -24 [h]	0.25 ± 0.05	0.09	0.21 ± 0.08	0.09
	1973 [K] -48 [h]	0.39 ± 0.02	0.15	0.32 ± 0.07	0.15
IFA/D	1973 [K] -24 [h]	0.35 ± 0.06	0.53	-	0.53
IFA/E	1973 [K] -24 [h]	0.28 ± 0.34	0.35	-	0.35

que $1.0 \mu\text{m}$. En el transcurso del primer período isotérmico a 1973 [K], la velocidad a la que el material densifica se reduce ya que los poros más grandes tienden a contraerse

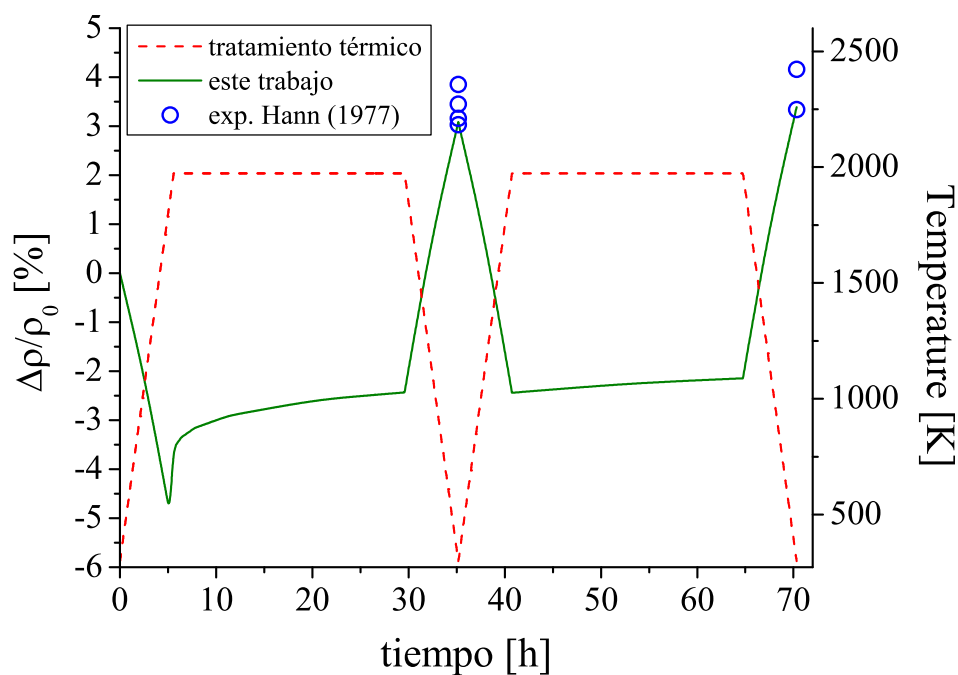


Figura 4.10: Simulación de la evolución dimensional de un combustible IFA/A resinterizado a 1973 [K] durante 48 [h] y su comparación con datos experimentales [36]

menos o incluso pueden aumentar de tamaño de acuerdo al balance de defectos que se establezca en sus superficies. Finalmente, durante la rampa de enfriamiento, la densidad aumenta debido a la contracción térmica. En el segundo ciclo del tratamiento, el comportamiento del combustible es similar con la diferencia que la velocidad de densificación disminuye considerablemente debido a la saturación del proceso, es decir, los poros más pequeños ya densificaron. Se puede observar que los resultados obtenidos con la simulación se encuentran dentro del rango de dispersión de los datos experimentales.

Tabla 4.9: Relaciones y ecuaciones utilizadas en el nuevo modelo de densificación del código DIONISIO

definición ³	ecuación	ref.
Evolución temporal de la concentración de defectos puntuales	$\begin{aligned} \dot{C}_v &= Y_{vi}\Omega\dot{F} + \sum_{j=1}^n \left(S_{pj}^a D_v C_{vj}^{sp} + NK_j^a \right) + \sum_{l=1}^m \left(S_{pl}^e D_v C_{vl}^{sp} + NK_l^e \right) + \\ &= + (S_{dv} + S_{BGv}) D_v C_v^{eq} - S_{tv} D_v C_v - \alpha D_i C_i C_v \end{aligned}$	[7]
Evolución temporal del tamaño de los poros	$\begin{aligned} \dot{C}_i &= Y_{vi}\Omega\dot{F} - S_{tv} D_i C_i - \alpha D_i C_i C_v \\ \dot{r}_p^a &= \frac{1}{r_p^a} \left[D_v (C_v - C_v^{eq}) - D_i C_i - \frac{(r_p^a + r_{int})^2}{2r_p^a} \Omega\dot{F}\eta\lambda f_{sat, vl}^a \right] \\ \dot{r}_p^e &= \frac{1}{r_p^e} \left[D_v (C_v - C_v^{eq}) - D_i C_i - \frac{(r_p^e + r_{int})^2}{2r_p^e} \Omega\dot{F}\eta\lambda f_{sat, vl}^e f_{tim} + \right. \\ &= \left. + w D_{UBG} \frac{\Omega\Delta P^e}{r_p^e k_b T} \right] \end{aligned}$	[7]
tasa de emisión de vacancias desde un poro intra.	$NK^a = 2\pi (r_p^a + r_{int})^2 N_p^a \Omega\dot{F}\eta\lambda f_{sat, vl}^a$	
tasa de emisión de vacancias desde un poro inter.	$NK^e = 2\pi (r_p^e + r_{int})^2 N_p^e \Omega\dot{F}\eta\lambda f_{sat, vl}^e f_{tim}$	[37]
redisolución de las vacancias de un poro	$f_{vl} = 1 - n_g^0 b_{vw} / V_p$	
función de forma de la saturación de vacancias	$f_{sat} = \max[0; 1 - C_v / C_{v,sat}]$	[10]
límite de emisión de vacancias de un poro	$f_{tim} = \max[0; 1 - 3.6r_p / R_g]$	[38]
densidad de dislocaciones en UO ₂	$\rho_D = \max[10^{12}; 10^4 \exp(-2.07 \times 10^{-3}(T - 273.15) + 21.825)] \text{ [m}^{-2}\text{]}$	[7]
media distancia promedio entre dislocaciones	$r_{md} = 1 / \sqrt{\pi\rho_D}$	

Continúa en la siguiente página

Tabla 4.9 – continuación

definición	ecuación	ref.
fuerza de sumidero de un poro intra- e intergranular	$S_p^a \approx 4\pi r_p^a N_p^a; S_p^e \approx 2\pi r_p^e N_p^e$	[39], [7]
fuerza de sumidero de una dislocación para defectos puntuales	$S_{d(v,i)} = \frac{2\pi\rho_D z(v,i)}{\ln(r_{md}/r_{cdv})}; z_v = 1; z_i = \frac{\ln(r_{md}/r_{cdv})}{\ln(r_{md}/r_{cdi})}$	[39], [40]
radio de captura espontánea de defectos puntuales por dislocaciones	$r_{cd(v,i)} = r_a + \frac{1}{2} \left \frac{(1+\mu)G\Delta V_{(v,i)}b}{3(1-\mu)kT\pi} \right ; r_a \sim 5b, b: \text{vector de Burgers}$	[41]
fuerza de sumidero de borde de grano	$S_{BG(v,i)} \approx (3/R_g) \left(S_{d(v,i)} + \sum_{j=1}^n S_{p_j}^a + \sum_{l=1}^m S_{p_l}^e \right)^{1/2}$	[39]
fuerza total de sumidero	$S_{t(v,i)} = S_{d(v,i)} + \sum_{j=1}^n S_{p_j}^a + \sum_{l=1}^m S_{p_l}^e + S_{BG(v,i)}$	[1]
módulo de Poisson del UO_2	$\mu = 1.32(1 - 0.26P_T) - 1$	[42]
módulo de corte y elástico del UO_2	$G = \frac{E}{2(1+\mu)}; E[\text{Pa}] = 2.334 \times 10^{11}(1 - 2.752P_T) \times (1 - 1.0915 \times 10^{-4}T)$	[7]
concentración de vacancias en la superficie de un poro y en equilibrio termodinámico	$C_v^{sp} = C_v^{eq} \exp(\Omega\Delta P/kT); C_v^{eq} = 2.0 \exp(-3.3[\text{eV}]/k_bT)$	[7]
diferencia de presión en la superficie de un poro intra- e intergranular	$\Delta P^{(a,e)} = p_{in}^{(a,e)} - p_h - 2\gamma f_A/r_p^{(a,e)} f_V; p_h: \text{presión externa}$	
presión interna de un poro	$p_m^{(a,e)} = n_g^0 RT / (V_p^{(a,e)} - n_g^0 b_{vw})$	poros intragranulares
factor geométrico superficial para un poro	$f_A = \begin{cases} 0 & \text{poros intragranulares} \\ \frac{\kappa^2}{\sin^2(\theta)}(1 - \cos(\theta)) & \text{poros intergranulares; } \kappa = 1.294 \end{cases}$	

³Los superíndices “a” y “e” corresponden a poros intra- e intergranulares

4.2. Modelo de hinchamiento en UO_2

Cuando una pastilla de UO_2 se encuentra bajo irradiación neutrónica, los átomos de ^{235}U se fisionan en los denominados productos de fisión (FP). Estos productos pueden ser estables y acumularse en el dominio del combustible, otros son radioactivos y eventualmente pueden decaer en nuevas especies y algunos pueden capturar neutrones generando así especies estables o inestables [43].

Analizar el comportamiento de los FP a lo largo de la vida útil de un combustible es importante por tres razones principalmente [1]:

1. La naturaleza química de los FP tiene influencia en la disponibilidad del oxígeno en el combustible, es decir, en el potencial químico de este. Esto, a su vez, determina si el combustible puede reaccionar químicamente con el material de la vaina en caso de contacto, afectando así todo el sistema. Además, los FP afectan el comportamiento térmico de la pastilla al influenciar la conductividad térmica de la misma.
2. El estado físico de los FP, en conjunto con sus propiedades químicas, determina el volumen ocupado por estas especies, siendo su efecto promedio el de incrementar el volumen de la pastilla con respecto a su estado inicial. Este fenómeno se conoce como hinchamiento o *swelling* y es el que nos ocupa en este capítulo.
3. Una porción de los FP es de naturaleza gaseosa, los cuales pueden escapar de la pastilla y ubicarse en el volumen libre de la barra. Por un lado, esto afecta a la conductividad térmica de la mezcla de gases, originalmente He, y por otro, se incrementa la presión interna de la barra, afectando así su comportamiento termomecánico.

Se estima que alrededor del 30% de los FP creados durante la operación normal de un reactor son gases nobles, Xenón (Xe) y Kriptón (Kr). Como la solubilidad de estos átomos en la red cristalina del UO_2 es muy baja [44], estos átomos tienden a migrar por la microestructura, precipitando como burbujas dentro de los granos del combustible (burbujas intragranulares) o en bordes de grano (burbujas intergranulares). Las burbujas intragranulares pueden alcanzar tamaños del orden de los nanómetros, mientras que las intergranulares resultan significativamente mayores, del orden los micrómetros.

Debido al tamaño de las burbujas intergranulares, estas pueden interactuar entre ellas generando un camino rápido para la liberación de gases hacia el exterior de la pastilla combustible. En conjunto con el aumento de presión interna de la barra, esta liberación constituye una amenaza potencial en el caso de rotura accidental del *cladding* tanto en operación dentro del reactor como durante el transporte de la barra combustible gastada hacia una planta de reprocesamiento [1].

Es por esto, que el modelado del comportamiento de los FP sólidos y gaseosos, tanto en el fenómeno de *swelling* como en la liberación de gases de fisión (FGR) resultan fundamental para obtener una descripción íntegra de la evolución de una barra combustible

bajo condiciones de irradiación. A continuación, se presentan los modelos incorporados en DIONISIO relacionados a *swelling* y a FGR y sus correspondientes validaciones.

4.2.1. Hinchamiento por productos sólidos de fisión

Según Olander [1], los productos sólidos de fisión durante la irradiación de un óxido combustible pueden clasificarse en:

- **FP en solución:** constituye aquellos productos que son capaces de formar soluciones sólidas en la matriz del óxido. Entre ellos se encuentran: Y, las tierras raras, una parte del Zr que no se encuentra como zirconatos, Nb y la fracción de Mo en forma de óxido. Estos últimos tres elementos forman compuestos MO_2 con una estructura del tipo fluorita, al igual que el UO_2 . Por otra parte, si bien el Ytrio y las tierras raras forman óxidos M_2O_3 , se suponen que tienen una estructura fluorita cuando están disueltos en la matriz del combustible nuclear.
- **Inclusiones metálicas:** formadas por Mo, Ru, Tc, Rh, Pd. Desde el punto de vista del cambio de volumen, se considera que estos cinco elementos se mezclan de forma ideal.
- **Inclusiones de óxidos alcalinotérreos:** $BaZrO_3$ y $SrZrO_3$
- **otros productos:** considerados como sólidos iónicos. Entre ellos se tiene: I y Te, Cs y Rb, y otros productos sólidos que tienen un rendimiento muy bajo, como Ge, As, Se, Br, Ag, Cd, In, Sn y Sb.

El hinchamiento debido a productos sólidos de fisión se puede calcular utilizando el volumen parcial (v_i) para cada uno de los elementos mencionados:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{sól}} = \left(\sum_{\text{sól}} Y_i \frac{v_i}{v_U} - 1\right) Bu \quad (4.19)$$

donde Y_i es el rendimiento de cada producto de fisión, v_U el volumen de cada molécula de UO_2 y Bu es el quemado del combustible en [FIMA]⁴.

Existen algunas limitaciones de este enfoque. En primer lugar, los volúmenes parciales de cada elemento en la matriz cerámica deben ser cantidades conocidas, y en muchos casos solo se tienen algunas estimaciones, generando así importantes incertidumbres en este cómputo. Por otro lado, existe evidencia que algunos productos sólidos pueden migrar en presencia de grandes gradientes de temperatura [1], para lo cual debería acoplarse un modelo que permita conocer la evolución temporal y espacial de las especies en la pastilla. Si bien se está trabajando en un nuevo módulo en DIONISIO que permite este cálculo de especies [45], aún se debe ampliar su base de datos para todas las especies mencionadas

⁴FIMA es la fracción de fisiones por átomo de metal pesado inicial (U o Pu). $[MWd/kgU] \cong 9.75 [\%FIMA]$

que tienen efecto en el hinchamiento por productos sólidos. Por estas razones, se suele considerar una banda de incertidumbre de $\pm 50\%$ en el valor de hinchamiento calculado.

Basados en estimaciones del efecto que tienen los FP en el parámetro de red del UO_2 y el cambio de volumen que introducen las segundas fases, diferentes modelos se han publicado en la literatura en los que el hinchamiento por productos sólidos es simplemente una relación lineal del quemado (Bu), como en la Ec. (4.19). Uno de ellos es el recogido por Olander [1] que se define como:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{sól}} = 0.32 \cdot Bu \quad (4.20)$$

en donde Bu se mide en [FIMA].

Williamson [46] propone la siguiente expresión:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{sól}} = 6.407 \times 10^{-5} \cdot \rho Bu \quad (4.21)$$

en donde ρ es la densidad del combustible en $[\text{kg}/\text{m}^3]$.

Una propuesta más actual para el código FRAPCON-4.0 [47], incorpora la siguiente relación para el *swelling* sólido, que incluye casos de muy alto quemado:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{sól}} = \begin{cases} f_B 2.315 \times 10^{-23} (1 + 0.1\kappa_{err}) & BU < 80 \text{ [MWd/KgU]} \\ f_B 3.211 \times 10^{-23} (1 + 0.1\kappa_{err}) & BU > 80 \text{ [MWd/KgU]} \end{cases} \quad (4.22)$$

donde κ_{err} es un parámetro, a elección del usuario, para controlar la incertidumbre de las estimaciones ($\kappa_{err} = 1$ indica un error de $+10\%$), y f_B se define como:

$$f_B = 2.5695 \times 10^{15} \rho_0 BU \quad (4.23)$$

en donde ρ_0 es la densidad inicial del combustible y el quemado BU se mide en $[\text{MWd}/\text{kgU}]$

En la Figura 4.11 se muestra una comparación entre los tres modelos de *swelling* sólido presentados anteriormente, en donde se consideró una incertidumbre de $\pm 20\%$ para el modelo de FRAPCON-4.0 [47]. El área sombreada corresponde a una estimación del hinchamiento entre 0.15 y 0.45 % cada 10 $[\text{MWd}/\text{kgU}]$ de quemado que incorpora las incertidumbres por migración de especies y volúmenes parciales de las mismas [48]. Como puede observarse, los modelos de FRAPCON-4.0 y el de Williamson se encuentra por arriba del rango máximo estimado del *swelling* sólido. Estos modelos fueron ajustados en base a datos experimentales de cambios dimensionales de pastillas a quemados elevados ($Bu > 30 \text{ [MWd}/\text{kgU}]$) que incluyen el efecto de la densificación, el hinchamiento por productos sólidos y gaseosos, por lo que sus ajustes dependen de las incertidumbres de los modelos de densificación, de formación de burbujas intra- e intergranulares y la liberación de gases de fisión. Por esta razón, en este trabajo, las simulaciones se realizan considerando la estimación de [1] que se encuentra en la zona sombreada.

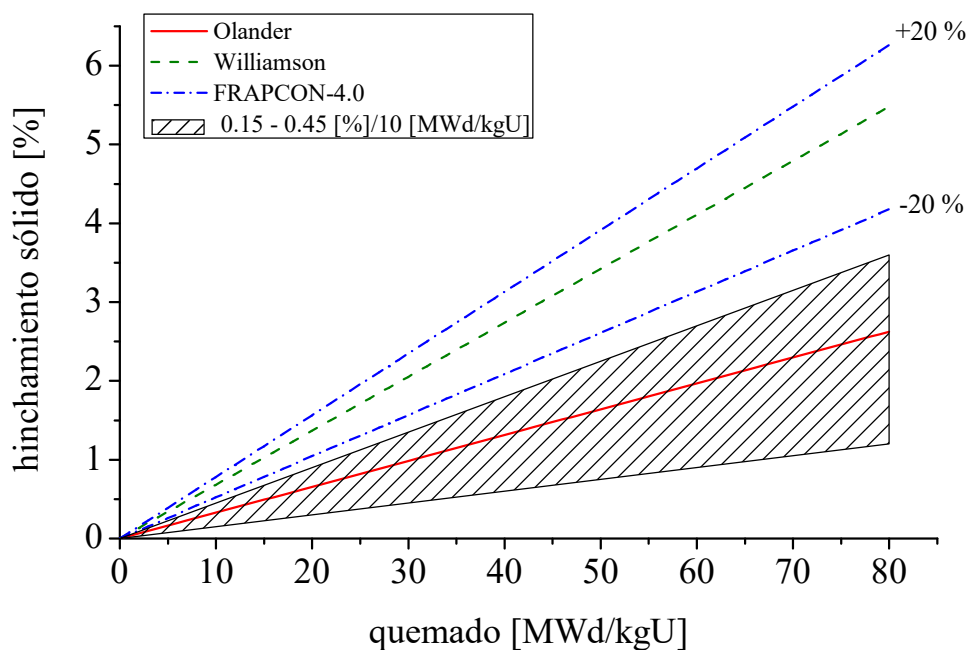


Figura 4.11: Comparación del hinchamiento por productos sólidos de fisión entre datos experimentales y los modelos de FRAPCON-4.0 [47], Olander [1] y Williamson [46]

4.2.2. Hinchamiento intragranular

Los productos gaseosos de fisión que se producen en la matriz del combustible difunden por la misma, pudiendo precipitar en forma de pequeñas burbujas intragranulares (dentro del grano del combustible), como consecuencia de su baja solubilidad en UO_2 , o alcanzar sumideros de la microestructura, como por ejemplo los bordes de grano. Se ha probado experimentalmente que, bajo condiciones normales de operación, estas burbujas adquieren tamaños entre 1 y 10 [nm] con una distribución de tamaños estrecha [49]. La evolución de las burbujas intragranulares dependen de los mecanismos de atrapamiento y de redisolución. El atrapamiento consiste en la captura de los átomos de gas dispersos en la matriz por las burbujas, aumentando así su tamaño, mientras que en la redisolución, la interacción de estas burbujas con los fragmentos de fisión o *spikes* las desestabilizan produciendo una liberación de átomos de gas que se reincorporan a la matriz [49, 50]. Este último proceso tiene similitudes con la liberación de vacancias en la interacción poro-*spike*, que se describió en la sección 4.1.1, y como consecuencia el tamaño de la burbuja disminuye.

Si bien la evidencia experimental comprueba la aparición de una población de burbujas intragranulares con tamaños que pueden llegar a los cientos de nanómetros cuando el combustible es irradiado hasta altos quemados ($\text{BU} > 60$ [MWd/kgU]) y sometidos a transitorios grandes de potencia, no se tienen en cuenta para este desarrollo [51].

En el modelo que se presenta en este trabajo, partiendo de trabajos anteriores [49, 52, 53] no se considera la migración de las burbujas intragranulares, ya que este fenómeno ocurre a temperaturas por encima de los 2273 [K] [54], así como tampoco se tiene en cuenta la interacción entre ellas, es decir, la coalescencia cuando dos o más burbujas se encuentran muy próximas entre sí.

Si se considera un grano de UO_2 , idealmente esférico, de radio R_g , la ecuación de difusión de gases es [53]:

$$\frac{\partial c_g}{\partial t} = D \cdot \left(\frac{\partial^2 c_g}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c_g}{\partial r} \right) - g \cdot c_g + b \cdot m_a + \beta \quad (4.24)$$

donde c_g es la concentración de átomos de gas en la matriz [at m^{-3}], t es el tiempo [s], D es el coeficiente de difusión de un átomo de gas en la red cristalina [m^2/s], r es la coordenada radial en el grano esférico [m], β es la tasa de generación de gas [$\text{at m}^3/\text{s}$], m_a es la concentración de átomos de gas en burbujas intragranulares [at m^{-3}] y g es la tasa de captura del gas disuelto por una burbuja [s^{-1}] y b es la tasa de redisolución de los átomos de gas atrapados en burbujas intragranulares hacia la matriz [s^{-1}].

La ecuación de balance para los átomos atrapados está dada por:

$$\frac{\partial m_a}{\partial t} = g \cdot c_g - b \cdot m_a \quad (4.25)$$

Por simplicidad, diferentes autores [52, 53, 55] proponen una condición denominada “cuasi-estacionaria” en la que se considera que en cada paso de tiempo, las burbujas se encuentran saturadas, es decir, que existe un equilibrio entre la cantidad de átomos de gas que son atrapados y liberados: $\partial m_a / \partial t = 0$. Si bien con esta aproximación se alcanzan buenos resultados en condiciones de operación normal, su aplicación no es válida cuando las variables varían muy rápidamente en el tiempo, como son los casos de accidentes.

Tomando en cuenta esta condición cuasi-estacionaria, la Ec (4.25) queda:

$$g \cdot c_g = b \cdot m_a \quad (4.26)$$

a partir de las Ec. (4.24) y (4.26), se puede obtener una única ecuación simplificada [53]:

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = D_{\text{eff}} \cdot \left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} \right) + \beta \quad (4.27)$$

en donde $\psi = c_g + m_a$ es la concentración total de gas dentro de un grano y $D_{\text{eff}} = Db/(b + g)$ es el coeficiente efectivo de difusión en volumen en el grano que tienen en cuenta una suerte de “apantallamiento” debido al atrapamiento de los gases de fisión.

La Ec. 4.27 se resuelve aplicando el algoritmo FORMAS, desarrollado por Forsberg y Massih [56, 57], en un grano de combustible idealmente esférico con una concentración inicial de gases de fisión nula, considerando los bordes de grano como sumideros infinitos y simetría al centro del grano, tal que:

$$\begin{cases} \psi(r, 0) = 0 \\ \psi(R_g, t) = 0 \\ \frac{\partial \psi(0, t)}{\partial r} = 0 \end{cases} \quad (4.28)$$

La tasa de cambio de la concentración de burbujas (N_{ba} [burbujas/m³]) se establece a partir de la tasa de nucleación de burbujas (ν_b) y el fenómeno de redisolución:

$$\frac{dN_{ba}}{dt} = \nu_b - b \cdot N_{ba} \quad (4.29)$$

en donde ν_b está dado en [burbujas/m³.s] y b es la tasa de redisolución en [s⁻¹]

Para el cálculo del radio de las burbujas intragranulares (r_{ba}), se considera que las burbujas contienen únicamente átomos de gas, ignorando la absorción de vacancias. De acuerdo a Olander y Wongsawaeng [58], el tamaño de las burbujas, con menos de 30 átomos de gas aproximadamente, son lo suficientemente pequeñas como para que su alta tensión superficial mantenga la densidad de las mismas cercanas a la del Xe en estado sólido. Esta sobre presurización fue corroborada experimentalmente por varios autores [49, 59, 60]. Considerando entonces, que todas las burbujas tienen el mismo tamaño y que la densidad de gas dentro es la misma, existirán m/N_{ba} átomos de gas en cada burbuja. Entonces, el radio r_{ba} [m] se expresa como:

$$r_{ba} = \left(\frac{3\Omega m_a}{4\pi N_{ba}} \right)^{1/3} \quad (4.30)$$

siendo $\Omega = 4.09 \times 10^{-29}$ [m³] el volumen atómico que ocupa el gas en la red [61]

Finalmente, con el radio y la concentración de burbujas se puede calcular el hinchamiento intragranular. Si consideramos un volumen de combustible V_s al cual se le introducen un cierto número de burbujas (n'_{ba}) de radio r_{ba} , el volumen final será:

$$V_f = V_s + \frac{4}{3}\pi r_{ba}^3 n'_{ba} = V_s \left(1 + \frac{4}{3}\pi r_{ba}^3 N'_{ba} \right) \quad (4.31)$$

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

$$N'_{ba} = \frac{N_{ba}}{1 - (4\pi r_{ba}^3/3)N_{ba}} \quad (4.32)$$

Entonces, el hinchamiento fraccional es:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0} \right)_{\text{intra}} = \left(\frac{4\pi r_{ba}^3}{3} \right) N'_{ba} = \frac{(4\pi r_{ba}^3/3)N_{ba}}{1 - (4\pi r_{ba}^3/3)N_{ba}} \quad (4.33)$$

Coefficiente de difusión D

Debido a que el Xe es el gas de fisión más preponderante (alrededor del 90% de los gases generados [2]), su difusión en volumen será la determinante para describir el modelo presentado. El proceso difusivo de los átomos de gas en la red cristalina del UO₂ es com-

plejo y depende de un gran número de variables, como la temperatura, la estequiometría del cristal, el quemado del combustible y la tasa de fisión [61, 62]. Similarmente, a la forma en que se construye el coeficiente de difusión de vacancias en UO_2 [6], en este trabajo, se describe el coeficiente efectivo de difusión como la superposición de tres términos, de acuerdo a [53, 63]:

$$D(T, \dot{F}) = D_1(T) + 4D_2(T, \dot{F}) + 4D_3(\dot{F}) \quad (4.34)$$

en donde T es la temperatura absoluta y \dot{F} es la tasa de fisión [fis/m³s].

Los términos de las Ec. 4.34 corresponden a:

- D_1 [m²/s] es el coeficiente de difusión intrínseco, y es dominante para temperaturas mayores que 1473 [K]. Este coeficiente se basa en un mecanismo de difusión por vacancias:

$$D_1 = 7.6 \times 10^{-10} \exp(-3.03 \text{ [eV]}/k_b T) \quad (4.35)$$

en donde $k_b = 8.61733 \times 10^{-5}$ [eV/K] es la constante de Boltzmann.

- D_2 [m²/s] coeficiente de difusión acelerado y es predominante para temperaturas intermedias, 1073 [K] < T < 1473 [K], en donde existe una sobre saturación de vacancias debido a la irradiación. La expresión de Turnbull et al. [63] es:

$$D_2 = 1.41 \times 10^{-25} \sqrt{\dot{F}} \exp(-1.19 \text{ [eV]}/k_b T) \quad (4.36)$$

en donde la tasa de fisión \dot{F} se mide en [fis/m³s].

- D_3 es coeficiente de difusión atómico y es dominante para temperaturas bajas, T < 1073 [K]. En este caso la difusión ocurre principalmente por un efecto balístico al colisionar los fragmentos de fisión con los átomos de gas en la red. La expresión para este mecanismo sigue los lineamientos de Matzke [21] y está dado experimentalmente por Turnbull [59]:

$$D_3 = 2 \times 10^{-40} [\text{m}^5] \dot{F} \quad (4.37)$$

Tasa de generación de gas

Aparte de un pequeño número de fisiones ternarias, que dan lugar a átomos de He o tritio, cada evento de fisión nuclear del ²³⁵U crea dos nuevos átomos de menor peso atómico. Para el estudio del hinchamiento y la liberación de gases de fisión, los productos de fisión que interesan son los isótopos estables de Xe y Kr, es decir, aquellos que tengan una vida media muy larga en relación con el tiempo de permanencia en el reactor. Aquellos isótopos con una vida media muy corta decaerán como productos sólidos de fisión en la escala de tiempo de operación del reactor. Los gases de fisión Xe y Kr son los elementos gaseosos más abundantes creados en combustibles de UO_2 , con un rendimiento aproximado de 0.3 átomos/fisión, de los cuales se considera que el 10 % corresponde a Kr y el 90 % a isótopos de Xe [1, 2].

Si se supone que las fisiones se distribuyen de manera homogénea en el grano de un combustible, la tasa de generación de gases de fisión es:

$$\beta = 0.3 \cdot \dot{F} \quad (4.38)$$

en donde β se mide en [át.gas/m³s]

Nucleación de burbujas

El fenómeno de nucleación consiste en la formación de un conjunto de átomos de gas estable, denominado embrión, que luego crecerán y formarán las burbujas intragranulares propiamente dichas. De acuerdo a Olander [1] este fenómeno, puede ocurrir como consecuencia directa de la interacción de los fragmentos de fisión con la red (*nucleación heterogénea*) o mediante la interacción de los átomos de gas disueltos en la red asistida por difusión (*nucleación homogénea*).

La evidencia experimental [59, 60] sugiere que la nucleación ocurre de forma predominantemente heterogénea, por lo que la tasa de nucleación ν_b es:

$$\nu_b = 2\eta_b \dot{F} \quad (4.39)$$

donde η_b es la cantidad de burbujas que nuclean por cada fragmento de fisión.

Basados en datos experimentales, diferentes autores sugieren valores constantes para η_b entre 5 y 100. Denis y Piotrkowski [53] utilizan un valor igual a 10, Olander y Wongsawaeng [58] utilizan 20, mientras que Pizzocri et al. [52] sugieren un valor igual a 25 para la simulación con el modelo descrito por dichos autores. Por otro lado, Lösönen [62] considera una dependencia del número de burbujas con la temperatura y que solo el 5% de las interacciones burbujas-*spikes* son probables. Si bien no existe evidencia contundente de esta dependencia, Lösönen [62] explica que a bajas temperaturas, pequeños aglomerados de átomos tienen tiempo de estabilizarse hasta que otros lleguen y así poder formar las burbujas. En este trabajo, usamos la siguiente expresión [62]:

$$\eta_b = 36.2530 - 0.0133 \cdot T \quad (4.40)$$

Sin embargo, en el análisis realizado por Lösönen [62] se considera un valor fijo para la distancia de interacción entre burbujas y *spikes*, mientras que Denis y Piotrkowski [53] y Turnbull [59] sugieren que esta distancia de interacción dependen del radio de las burbujas. Si se incorpora en el análisis de Lösönen esta variación de la distancia de interacción, se obtiene que la cantidad de burbujas nucleadas en cada evento de fisión es prácticamente independiente de la temperatura y cercano a 4.

Tomando en consideración esto, η_b es un parámetro de ajuste en el modelo en base a datos experimentales.

Tasa de captura de átomos de gas

Una vez producida la nucleación de las burbujas, estas incrementan su tamaño mediante la captura de los átomos de gas disueltos en la matriz que migran a través de ella. Este fenómeno fue estudiado por Ham [64], quien supone a las burbujas como sumideros esféricos de radio r_{ba} con una distancia promedio entre burbujas mayor a su diámetro y que la captura se hace efectiva cuando los átomos de gas se encuentran dentro de un determinado *volumen de captura*. La tasa de captura está dada por [52, 64]:

$$g = 4\pi D_{eff} (r_{ba} + r_{Xe}) N_{ba} \quad (4.41)$$

en donde r_{Xe} es el radio de un átomo de Xe en la red cristalina del UO_2 estimado en 0.2×10^{-9} [m].

Es importante destacar que en el combustible existen diversos defectos cristalinos, como impurezas, dislocaciones, poros, vacancias e intersticiales, que pueden afectar la cantidad de átomos de gas efectivamente disponibles para difundir y que no se tienen en cuenta en este trabajo.

Tasa de redisolución de burbujas

La redisolución ocurre cuando la interacción entre las burbujas y los fragmentos de fisión es tal las burbujas se rompen y los átomos de gas son devueltos a la red cristalina⁵. De esta manera, la redisolución actúa a favor de la liberación de gases de fisión, ya que los átomos dispersos pueden difundir al borde de grano y escapar, pero en oposición al hinchamiento, debido a que se reduce la cantidad de burbujas.

De acuerdo con Olander y Wongsawaeng [58], existen dos mecanismos posibles para la redisolución. Esta puede ser heterogénea, es decir que la burbuja se “destruye” completamente liberando todos sus átomos a la red, u homogénea, en la que la redisolución es parcial y los átomos se liberan de a poco en el tiempo con cada interacción. Simulaciones realizadas en dinámica molecular, concluyen que el mecanismo más probable es la redisolución heterogénea [65].

El mecanismo heterogéneo fue estudiado por Turnbull [59], en donde se propone que, para que una burbuja interactúe con un fragmento de fisión, el centro de la burbuja debe estar dentro de un volumen interacción, que tiene como largo el camino de un fragmento de fisión λ y área $r_{ba} + r_{int}$ dada por el producto entre la sección transversal de desplazamientos y el flujo de neutrones rápidos. A partir de esto, se establece que la tasa de redisolución es:

$$b = 2\pi \dot{F} \lambda (r_{ba} + r_{int})^2 \quad (4.42)$$

en donde $r_{int} = 1 \times 10^{-9}$ [m] es el rango de interacción entre una burbuja y un fragmento

⁵Previamente, se mencionó que la solubilidad termodinámica de los gases de fisión en la matriz del combustible es muy baja. No obstante, el fenómeno de redisolución hace que la solubilidad efectiva sea distinta de cero, por lo menos en los instantes desde que los átomos son dispersados hasta que alcanzan el borde de grano. Esta solubilidad se denomina “solubilidad dinámica” [1].

de fisión. Este análisis guarda íntima relación con la tasa de remoción de vacancias de un poro de fabricación durante la irradiación [6].

Ajuste del número de burbujas nucleadas η_b

Como ya se ha mencionado, el número de burbujas creadas por cada fragmento de fisión es un parámetro de ajuste del modelo aquí presentado. Para realizar este ajuste, se consideraron los datos experimentales obtenidos por Baker [60].

El experimento de Baker [60] consistió en irradiar pastillas de UO_2 , con una densidad de aproximadamente 97% de la densidad teórica, con una tasa de fisión equivalente a 0.94×10^{19} [fis/m³s] hasta alcanzar un quemado de 7.866 [MWd/kgU] [49]. Las burbujas fueron estudiadas mediante métodos de microscopía electrónica, tanto de transmisión (TEM) como de barrido (SEM), a partir de los cuales se obtuvo la concentración y el radio de burbujas intragranulares para temperaturas entre 1217 y 2069 [K]. La microestructura no se encontraba informada, por lo que se supuso un tamaño promedio de grano de 10 [μm] (valor típico a partir de la literatura [6]).

El modelo intragranular fue ejecutado variando η_b entre 10 y 40 y se analizó el radio de burbujas simulado versus el valor experimental. Pizzocri et al. [52] establece un error del 50% para el valor del radio medido por Baker [60].

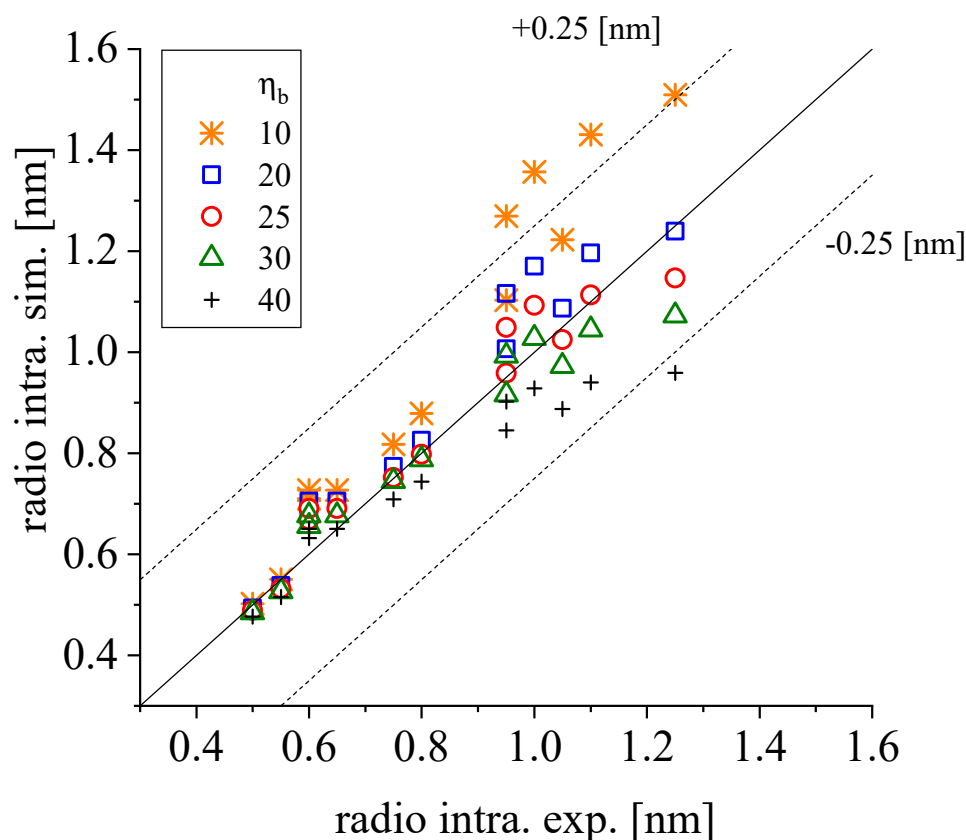


Figura 4.12: Comparación entre los radios de burbujas intragranulares simulados y los medidos experimentalmente para diferentes valores de η_b [60].

En la Figura 4.12 se presentan las comparaciones entre los radios medidos y calculados

haciendo variar el parámetro η_b . La línea sólida representa el acuerdo perfecto, mientras que las líneas de trazo representan desviaciones del 50% de radio mínimo medido. Para burbujas con radios menores que 0.9 [nm] ($T < 1673$ [K]), la cantidad de burbujas nucleadas por irradiación parece no tener una influencia importante, mientras que para radios mayores se observa una clara dependencia con este parámetro, disminuyendo el radio a medida que aumenta la cantidad de burbujas nucleadas. Debido a que la tasa de generación de gas no depende de η_b , al aumentar la concentración de burbujas, menor será el tamaño de las mismas para acomodar los gases de fisión. Esto podría suponer que para temperaturas altas (mayores que 1673 [K]), η_b toma valores distintos que a baja temperatura. Sin embargo, dado que los datos experimentales presentan un error importante, se requeriría información más precisa para llevar a cabo un estudio que determinara la dependencia con la temperatura. A partir del coeficiente de correlación de concordancia para cada conjunto de datos, se obtiene que el mejor ajuste en el radio se consigue con $\eta_b = 25$ y este es el valor usado en las simulaciones. Este valor está en línea con el sugerido por Pizzocri et al. [52].

Resultados del modelo de hinchamiento intragranular

Una vez ajustado el parámetro η_b , se ejecutó el modelo para simular el estudio experimental publicado por Cornell [66] en 1971.

Cornell [66] estudia la población de burbujas intragranulares en pastillas de UO_2 que fueron irradiadas en el reactor AGR Windscale, creado y operado por la Autoridad para la Energía Atómica del Reino Unido (UKAEA).

Los datos de operación y características de los combustibles fueron obtenidos de publicaciones de Lösönen [49], Turnbull [59] y Cornell [66]. Las burbujas fueron estudiadas mediante SEM para temperaturas entre 1048 y 1523 [K]. La tasa de irradiación osciló entre 4.15×10^{18} y 5.8×10^{18} [fis/m³s] hasta alcanzar quemados equivalentes entre 2.3×10^{26} y 4.6×10^{26} [fis/m³]. En este experimento no se encontró disponible información detallada de la microestructura, por lo que se supuso una porosidad inicial del 5% y tamaño de grano promedio de 10 [μm] [6].

Baker [60] realiza un análisis de los datos de Cornell, estableciendo que los radios medidos se encuentran sobre estimados y deben corregirse con un factor de 0.55, debido a la técnica de medición realizada.

En la Figura 4.13 se presenta la comparación entre los radios calculados y los medidos (con la corrección de Baker) que se realizaron a diferentes temperaturas. En líneas de trazo representan desviaciones del 50% de radio mínimo medido. Se superponen los resultados obtenidos para los datos experimentales de Baker a modo de comparación. Como puede observarse, todas las simulaciones alcanzan buenos resultados, aunque existe una pequeña subestimación en algunos valores de Cornell, y se encuentran dentro de la banda de error marcado.

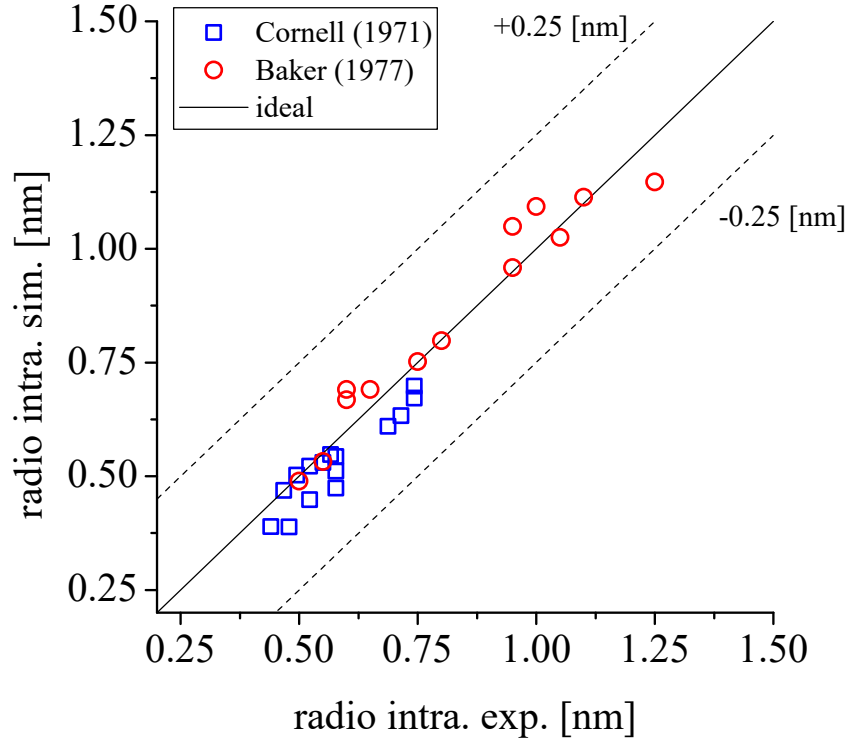


Figura 4.13: Comparación entre los radios de burbujas intragranulares simulados y los medidos experimentalmente [60, 66]. Las líneas de trazo representan $\pm 50\%$ del mínimo valor medido.

Si bien Baker establece una corrección para el radio de las burbujas medidas por Cornell, no hay referencia a una posible corrección de la concentración de burbujas. Esto es algo a tener en cuenta al momento de realizar alguna comparación. En las observaciones realizadas por Kashibe et al. [51], la concentración de burbujas es calculada de forma independiente del radio cuando se mide en TEM, calculando la concentración simplemente como el número de burbujas observado dividido entre el volumen de la muestra en el microscopio, mientras que en SEM su cálculo se realiza a partir del tamaño de las burbujas:

$$N_{ba} = \frac{V_{obs}}{V_{ba}} \quad (4.43)$$

siendo V_{obs} el volumen fraccional de las burbujas conseguido por el área ocupada en la muestra multiplicada por el espesor de la misma, y V_{ba} , el volumen de una burbuja de radio promedio r_{ba} .

Si suponemos que Cornell mide la concentración en función del tamaño de las burbujas, entonces estas deberían corregirse por un factor $(1/0.55)^3 \approx 6$.

Teniendo en cuenta lo descrito arriba, en la Figura 4.14 se presenta la comparación entre los valores medidos y calculados para la concentración de burbujas intragranulares, en donde se señalan los datos sin (s/c) y con (c/c) corrección. Además, se incluyen los resultados obtenidos para los datos de Baker. Las líneas de trazo corresponden a desviaciones en un factor de 2 desde los datos medidos [52]. Con respecto al grupo de mediciones realizadas por Baker, se observa una subestimación en los valores obtenidos con el modelo,

menor al 35 %. Esto se encuentra en línea dentro de los errores informados de alrededor del 30 %. En cuanto a las simulaciones del experimento de Cornell, se observa que los resultados se encuentran entre un límite inferior, dado por los datos sin corregir, y uno superior obtenido con la corrección de un factor 6. Está claro que se requiere mayor seguridad acerca de la validez de los datos experimentales para un mejor análisis. Sin embargo, los valores alcanzados por el modelo están en línea con los obtenidos por Pizzocri et al. [52].

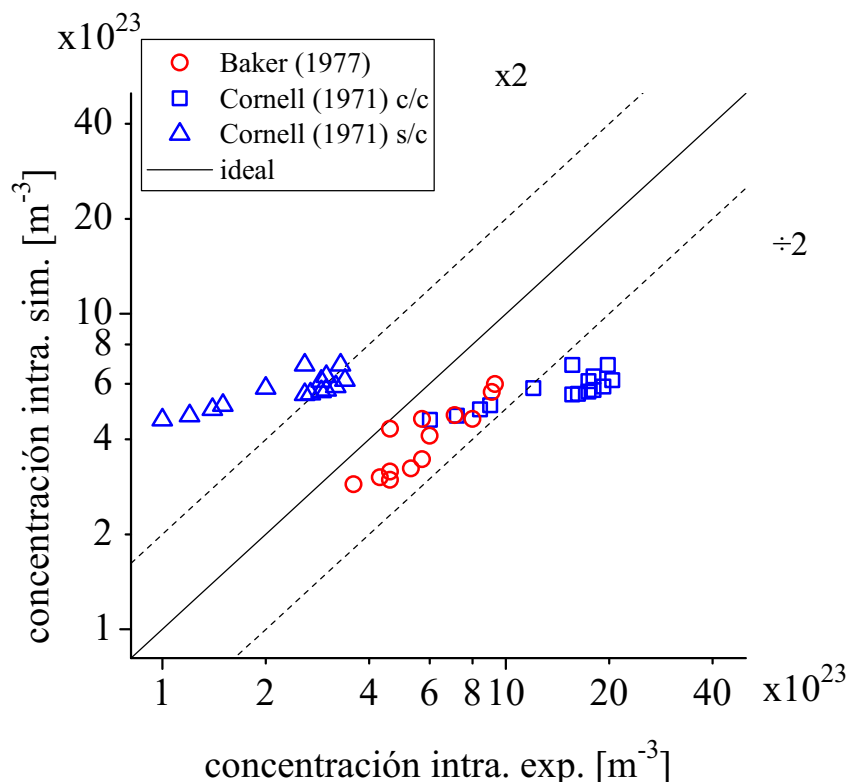


Figura 4.14: Comparación entre la concentración de burbujas intragranulares simulada y los datos experimentales [60, 66]. Los datos de Cornell [66] se presentan con (c/c) y sin corrección (s/c).

De forma similar, en la Figura 4.15 se muestra la comparación para hinchamiento intragranular entre los valores obtenidos por el modelo y los calculados a partir de los datos experimentales. Las líneas de trazo corresponden a desviaciones en un factor de 2, mientras que las líneas punteadas indican un factor 3 de desviación de los datos medidos, ya que esta variable depende de las incertidumbres de las variables radio y concentración. Para los datos de Baker se observa un buen comportamiento en la comparación, dado que estos datos son los utilizados para el ajuste del modelo. De igual manera a lo presentado para el caso de la concentración, las simulaciones se encuentran dentro de un rango posible de hinchamiento experimental en base a los datos experimentales disponibles.

A pesar de que se observan ciertas desviaciones, es necesario aclarar que la contribución del hinchamiento debido a burbujas intragranulares en una pastilla combustible es relativamente bajo. En la Figura 4.15, en donde la escala es logarítmica, el *swelling*

máximo corresponde a un 0.3 %.

Es importante destacar las limitaciones de este modelo. En primer lugar, como se mencionó previamente, no se tiene en cuenta el mecanismo de nucleación homogénea. Por otro lado, de acuerdo a Olander y Wongsawaeng [58], es posible que no todos los fragmentos de fisión sean capaces de nuclear burbujas ni que todas las interacciones burbujas *spikes* sean 100 % efectivas. No obstante, el modelo presenta buenos resultados generales.

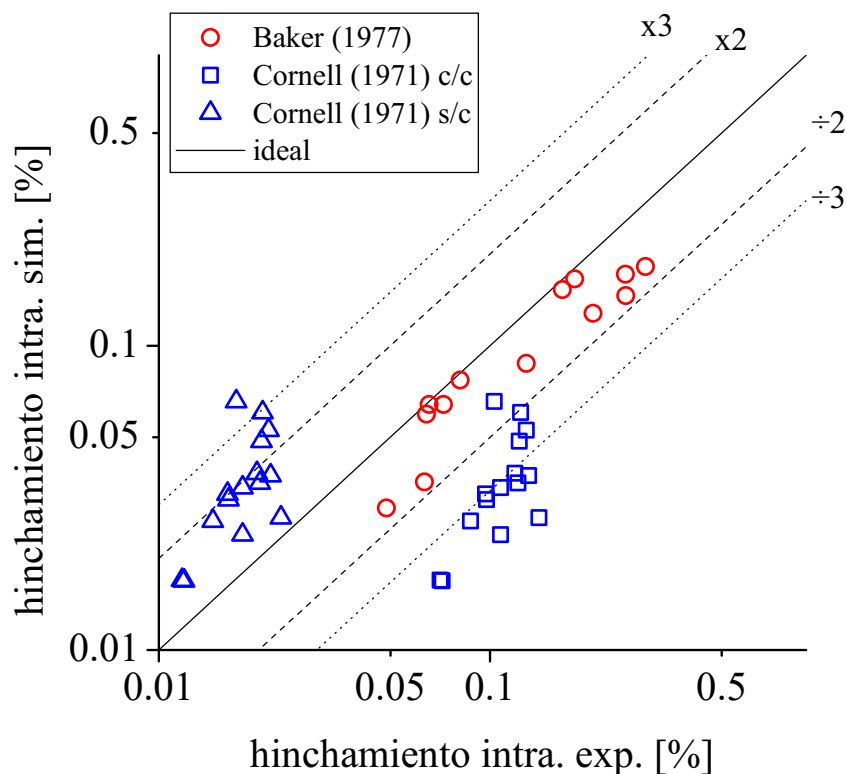


Figura 4.15: Comparación entre el hinchamiento intragranular simulado y los datos experimentales [60, 66]. Los datos de Cornell [66] se presentan con (c/c) y sin corrección (s/c).

4.2.3. Hinchamiento intergranular

La mayor contribución al cambio de volumen del combustible nuclear ocurre por la presencia de burbujas intergranulares que, a diferencia de las intragranulares, pueden crecer hasta el orden de los micrones [67-69]. Esto se debe principalmente a que se ubican en los bordes de grano que actúan como sumideros para los átomos de gas y los defectos puntuales. Dado que la difusión en borde de grano es varios órdenes de magnitud mayor que la difusión en el volumen del sólido, los bordes de grano constituyen caminos rápidos para la migración de defectos y el flujo hacia las burbujas se ve aumentado. Además, por estas mismas razones, al producirse la redisolución parcial de las burbujas intergranulares, los átomos liberados son rápidamente recapturados por estas burbujas, por lo que este efecto se ve limitado, lo que hace que las burbujas puedan crecer mucho más que en caso intragranular [70].

Otra de las diferencias fundamentales con respecto al módulo de gas intragranular es la

consideración de la influencia del fenómeno de coalescencia. La coalescencia es un proceso que ocurre cuando dos burbujas crecen y al ponerse en contacto se unen para formar una sola, lo que da como resultado una menor concentración de burbujas intergranulares, pero de mayor tamaño. Este crecimiento e interconexión entre las burbujas proporciona un camino rápido para la difusión del gas desde el interior del combustible hacia la superficie, para liberarse al volumen libre de la barra, produciendo así un aumento en la presión interna y una disminución de la conductividad térmica del *gap*.

Para modelar el comportamiento de las burbujas intergranulares, se toma como referencia el trabajo de Pastore et al. [55] y se consideran las siguientes características:

- Las burbujas intergranulares se suponen ubicadas en un borde entre dos granos y tienen una forma lenticular, de manera similar a los poros intergranulares del modelo de densificación (4.1.1). Los efectos de la presencia de burbujas ubicadas entre tres granos se desprecian en este análisis.
- Se supone que las burbujas nuclean por única vez en un primer instante y la nucleación no continúa con el avance de la irradiación del combustible.
- Las burbujas aumentan su tamaño a causa de la absorción de átomos de gas y vacancias que llegan al límite de grano controlada por la difusión en borde grano.
- En esta etapa del trabajo, el modelo de burbujas intergranulares se desarrolló y evaluó independientemente del modelo de densificación. Si bien los poros intergranulares, que presentan una determinada distribución de tamaños, acumulan gases de fisión, las burbujas intergranulares se consideran que presentan un único tamaño promedio representativo e independiente de la evolución de la población de poros de fabricación. Una pequeña discusión sobre la unificación de estos modelos se realizará hacia el final de esta sección.
- Debido a que los bordes de grano son caminos rápidos para la difusión, el flujo de átomos que se liberan desde las burbujas intergranulares por redisolución hacia el interior del grano no se tienen en cuenta en el modelo.
- El modelo considera la coalescencia entre burbujas ubicadas entre los granos, dando lugar a una menor concentración de burbujas de mayor tamaño.

La contribución de las burbujas intergranulares al hinchamiento se calcula empleando la siguiente expresión [55]:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{inter}} = \frac{1}{2} \frac{N_{be}}{(R_g/3)} \left(\frac{4}{3} \pi f_{V_b} \rho_{be}^3\right) \quad (4.44)$$

en donde, N_{be} es la concentración de burbujas intergranulares medida en unidad de área de borde de grano [burbujas/m²], R_g [m] es el radio promedio de un grano del combustible, la relación $(R_g/3)$ es la relación entre el volumen y el área de un grano, ρ_{be} [m] es el radio

de curvatura de una burbuja lenticular y $f_{V_b} = 1 - 1.5 \cos \theta + 0.5 \cos^3 \theta$. El factor (1/2) de la ecuación anterior da cuenta de que cada burbuja es compartida por dos granos del material y $\theta = 50^\circ$ es el ángulo diedro determinado por el balance entre tensiones superficiales de la burbuja y del borde de grano (Sección 4.1.1).

Nucleación de burbujas intergranulares

El mecanismo de nucleación de las burbujas intergranulares fue explicado por White [71] en base a observaciones experimentales. White sugiere que, pese a que se podría esperar que la nucleación de las burbujas intergranulares ocurra de forma continua, como lo hacen las intragranulares, el tamaño de la población inicial tendería a absorber las nuevas burbujas nucleadas, generando el efecto de que la nucleación ocurre una sola vez al comienzo de la irradiación denominado *one-off process*. De acuerdo con este trabajo, cuando las burbujas intragranulares nuclean muy cerca del borde de grano y estas comienzan a crecer, se ubican en los límites de grano convirtiéndose así en burbujas intergranulares. Se estima que la concentración inicial de burbujas se encuentra entre 1×10^{13} y 5×10^{13} [burbujas/m²]. En este trabajo, se eligió como concentración inicial $N_{be_0} = 4 \times 10^{13}$ [burbujas/m²], tomado como referencia del trabajo de Pastore et al. [55]

Crecimiento de burbujas intergranulares

Como se mencionó previamente, las burbujas ubicadas en los bordes de granos cambian sus dimensiones por el flujo neto, vacancias y átomos de gas que se establece en la superficie de las mismas. Con respecto a la absorción de átomos de gas, el modelo supone que todos los átomos de gas que llegan al borde de grano pasan a formar parte de las burbujas intergranulares de manera instantánea. Esta captura inmediata implica que no existen átomos de gas “libres” en los bordes de grano producto de la alta difusión en los mismos.

Las burbujas presentan una presión interna, por los átomos de gas, que debe balancearse con la presión debida a la tensión superficial y al esfuerzo hidrostático que ejerce el material para mantenerlas en equilibrio. Para lograr este equilibrio, se produce una absorción o emisión de vacancias tal que [55]:

$$\frac{dn_v}{dt} = \frac{2\pi w D_{UBG}}{k_b T S} \left(p_{int} - \frac{2\gamma}{\rho_{be}} - \sigma_h \right) \quad (4.45)$$

siendo n_v el número de vacancias dentro de la burbuja, D_{UBG} [m²/s] el coeficiente de difusión en el borde de grano dado en la Sección 4.1.1, $w = 1 \times 10^{-9}$ [m] el espesor del borde de grano [7], $k = 1.38065$ [J/K] la constante de Boltzmann, T la temperatura absoluta, p_{int} [Pa] la presión interna de la burbuja a causa del gas, γ [N/m] es la tensión superficial para una burbuja tomada del modelo de densificación [7] y σ_h es la presión hidrostática que ejerce el material, la cual se considera positiva (+) cuando el esfuerzo es

de compresión. El parámetro S representa la fuerza del sumidero, y está dado por:

$$S = -0.25 [(3 - F_c)(1 - F_c) + 2 \ln(F)] \quad (4.46)$$

donde $F_c = N_{be}A_{be}$ es un parámetro adimensional que representa la fracción del borde de grano que se encuentra cubierta por las burbujas intergranulares, con A_{be} , el área de la burbuja proyectada sobre el borde de grano.

La presión interna de la burbuja se puede obtener utilizando la ecuación de estado de Van der Waals, omitiendo la interacción entre los átomos de gas, para describir el estado termodinámico del gas dentro de la burbuja [1]:

$$p_{int} \left(V_{be} - n_{ge} \frac{b_{vw}}{N_A} \right) = \frac{n_{ge}}{N_A} RT \quad (4.47)$$

en donde V_{be} es el volumen de una burbuja intergranular, n_{ge} es la cantidad de átomos de gas que almacena la burbuja, N_A es el número de Avogadro, b_{vw} [m^3/mol] es la constante volumétrica de Van der Waals para el Xe y R la constante de gases ideales.

El volumen V_{be} de una burbuja que contiene n_g átomos de gas y n_v vacancias con volumen Ω es:

$$V_{be} = n_{ge} \frac{b_{vw}}{N_A} + n_v \Omega \quad (4.48)$$

A partir de las Ec. (4.47) y (4.48) se puede escribir:

$$p_{int} = \frac{RT}{N_A \Omega} \frac{n_{ge}}{n_v} \quad (4.49)$$

Una vez que se produce la generación de gas por las fisiones del material físil, estos pueden ubicarse dentro de una burbuja intragranular o intergranular, estar disueltos en una pequeña proporción, en la red cristalina o liberarse hacia el volumen libre. Para conocer la concentración de gas intergranular por unidad de volumen (m_e) se realiza un balance de masas:

$$m_e = \beta t_{irr} - c_g - m_a - c_L \quad (4.50)$$

en donde t_{irr} es el tiempo de irradiación en segundos, y c_L es la cantidad de átomos de gas por unidad de volumen que fueron liberados hacia el plenum de la barra combustible. Entonces el número de átomos de gas en cada burbuja está dado por:

$$n_{ge} = \frac{m_e (R_g/3)}{N_{be}} \quad (4.51)$$

Finalmente, a partir del volumen de una burbuja se calcula su radio de curvatura como:

$$\rho_{be} = \left(\frac{3V_{be}}{4\pi f_{V_b}} \right)^{1/3} \quad (4.52)$$

Descripción de la coalescencia entre burbujas

Durante el proceso de coalescencia, las burbujas intergranulares crecen y cuando interactúan mecánicamente, se unen y su número total decrece. El modelo considera que cada burbuja que tiene un radio proyectado sobre el plano del borde de grano $r_{be} = \rho_{be} \sin \theta$ posee una zona de exclusión alrededor de la misma de radio $2r_{be}$. Si el centro de otra burbuja se encuentra dentro de esta zona de exclusión, entonces se produce la coalescencia. Además, el modelo supone que deben mantenerse los volúmenes, es decir, el volumen de la nueva burbuja de mayor tamaño debe ser la suma de los volúmenes individuales [55, 71]. Bajo estas condiciones, si el área proyectada de cada burbuja se incrementa un valor $dA_{be} = 2\pi r_{be} dr_{be}$, el área de exclusión aumenta $4dA_{be}$, lo que hace que $4N_{be}dA_{be}$ sean recolectadas durante la coalescencia. A partir de esto, White [71] establece que:

$$\frac{dN_{be}}{dt} = -2N_{be}^2 \frac{dA_{be}}{dt} \quad (4.53)$$

en donde el coeficiente 4 se ha reducido a 2 para evitar tener en cuenta dos interacciones iguales.

Aunque la concentración de burbujas disminuya, esta no lo puede hacer indefinidamente y basado en el código de combustible BISON [72], se toma un límite inferior igual a 10^{10} [burbujas/m²].

Liberación de gases de fisión

Cuando la coalescencia y el crecimiento de burbujas ubicadas en los límites entre grano es tal que se forman canales interconectados, comienza la liberación de los gases de fisión hacia el volumen libre y la velocidad de hinchamiento debido a burbujas intergranulares se reduce. Poder describir este proceso con precisión y generar un modelo físico-matemático a partir de esto es una tarea muy compleja, que por el momento excede los límites de este trabajo y los fines prácticos, para lo cual fue creado el código de combustible DIONISIO.

Veshchunov [73] propone un modelo para describir este fenómeno en base al principio de saturación de burbujas en borde de grano. De acuerdo a este modelo, cuando la fracción del borde de grano cubierta por burbujas (F_c) alcanza un cierto límite, denominado de saturación $F_{c,sat}$, comienza esta liberación de gases, ya que se supone que se han creado canales entre las burbujas que interconectan al material generando una porosidad abierta. Una vez comenzado el proceso de liberación, la despresurización de estos canales hace que colapsen, disminuyendo en promedio la concentración de burbujas. Cuando esto sucede y se restablece que $F_c < F_{c,sat}$, la liberación se detiene momentáneamente, hasta que las burbujas crezcan, se unan por coalescencia y se alcance nuevamente $F_c = F_{c,sat}$, repitiendo el proceso anterior una y otra vez. Es un criterio general, basado en datos experimentales, que la saturación se produce cuando $F_{c,sat} = 0.5$ [73].

Basado en esta descripción, Pastore et al. [55] establece que una vez alcanzada la

saturación se debe cumplir que $dF_c/dt = 0$, con lo cual la variación de la concentración de burbujas intergranulares en estas condiciones debe cumplir que:

$$\frac{dF_c}{dt} = \frac{d(N_{be}A_{be})}{dt} = 0 \quad (4.54)$$

$$\frac{dN_{be}}{dt}A_{be} + \frac{dA_{be}}{dt}N_{be} = 0 \quad (4.55)$$

$$\frac{dN_{be}}{dt} = -\frac{N_{be}}{A_{be}} \frac{dA_{be}}{dt} \quad (4.56)$$

De forma general, se puede escribir ahora que la concentración varía según:

$$\frac{dN_{be}}{dt} = \begin{cases} -2N_{be}^2 \frac{dA_{be}}{dt} & F_c < F_{c,sat} \\ -\frac{N_{be}}{A_{be}} \frac{dA_{be}}{dt} & F_c = F_{c,sat} \end{cases} \quad (4.57)$$

Finalmente, se puede demostrar que la tasa de variación de la cantidad de gas liberado por unidad de volumen es:

$$\frac{dc_L}{dt} = \begin{cases} 0 & F_c < F_{c,sat} \\ -\frac{m_e}{N_{be}} \frac{dN_{be}}{dt} & F_c = F_{c,sat} \end{cases} \quad (4.58)$$

A partir de las expresiones anteriores, integrando temporalmente, se puede obtener la fracción porcentual de gas liberado, como $FGR[\%] = c_L/c_{gen}$, siendo c_{gen} la cantidad de gas total generado durante la irradiación por unidad de volumen.

El mecanismo descrito hasta ahora está comandado por el flujo de átomos de gas que llegan hasta el borde de grano por migración y depende de la temperatura. A mayor temperatura, mayor será la cantidad de gas liberado. Sin embargo, es importante mencionar que existen otros mecanismos de liberación de gases que son independientes de la temperatura y que no son tenidos en cuenta en este trabajo. Estos mecanismos son [44]:

- *Recoil*: Un producto de fisión gaseoso que se genera cercano a la superficie libre (<6-7 μm) puede escapar del combustible debido a su alta energía cinética.
- *Knockout*: Cuando un fragmento de fisión realiza colisiones elásticas con los núcleos de los átomos de la matriz y comienza la cascada de daño, esta puede interactuar con productos gaseosos formados previamente en la red cristalina y eyectarlo si se encuentran cerca de la superficie.
- *Sputtering*: La pérdida de energía de un fragmento de fisión se traduce en calor local en el combustible. Si esto ocurre en la superficie, este calor local puede tener energía suficiente para liberar por evaporación cualquier producto de fisión que se encuentra en dicha zona.

En general, la fracción de liberación mediante mecanismos atérmicos está por debajo del 1 % para quemados de hasta 45 MWd/KgU [44], por lo que puede despreciarse su efecto sin perder mucha precisión en el cálculo.

Efectos de las microfisuras en la pastilla

Si bien el principal mecanismo de liberación de gases de fisión en condiciones normales de operación es a través de la interconexión de burbujas en bordes de grano, existe otro mecanismo que no está asistido por difusión y se produce durante transitorios rápidos de potencia ocasionando saltos repentinos en la liberación (*burst release*). Notley y MacEwan [74] y Carroll et al. [75] proponen que estos saltos se deben a microfisuras (*micro-cracking*) que se producen en los bordes de grano debido al efecto de las tensiones térmicas y la presión del gas de las burbujas. Las microfisuras producen una separación de los bordes de grano, haciendo que el gas que estaba contenido en ellos sea liberado rápidamente. La evidencia experimental obtenida en barras con UO_2 sometidas a transitorios de potencia respaldan esta teoría [76, 77] y es la más aceptada actualmente.

Para considerar este efecto en este trabajo, se decidió implementar el modelo desarrollado por Barani et al. [78], que permite ser acoplado con facilidad al código basado en los modelos aquí presentado. Teniendo en cuenta el alcance de este trabajo, aquí se presentará únicamente las bases del modelo y sus formalismos matemáticos pueden consultarse en la publicación señalada anteriormente.

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

- Pérdida de gases presente en las burbujas intergranulares. Esta pérdida debida a la aparición de fisuras sobre el borde de grano es interpretada, por sus autores, como que la fracción de área cubierta por burbujas F_c se reduce afectándola por un factor f_{intact} , que es la fracción de bordes de granos intactos, que aún no se han fisurado.
- Pérdida en la capacidad del borde de grano de almacenar gas. Una vez generada una fisura sobre un borde de grano, este ya no puede almacenar gas, ya que se produjo un camino para la liberación. Esto también se relaciona con el factor f_{intact} afectando a $F_{c,sat}$. En este caso, se considera que a medida que se generan fisuras, los bordes de granos reducen su fracción de saturación para la cobertura de burbujas. Además, el modelo incluye un fenómeno de recuperación progresiva de la capacidad de almacenar gas que depende del quemado del combustible.

Este modelo ha mostrado muy buenos resultados al compararlos con los datos experimentales como veremos en el Capítulo 5.

Efectos del crecimiento de grano

Se ha observado experimentalmente que, en promedio, los granos del combustible aumentan su tamaño [8, 79]. Esto afecta al comportamiento de los gases de fisión de las

siguientes maneras [80]:

- Aumenta la distancia que deben recorrer los gases de fisión de la red cristalina hasta alcanzar los bordes de grano.
- Se reduce la relación superficie-volumen del grano, con lo cual disminuye la cantidad de bordes de grano y esto altera la capacidad de almacenar gases en los mismos.
- El movimiento de los bordes de grano durante el crecimiento del grano captura los gases de fisión de la red cristalina ubicándolos en las burbujas intergranulares.

En trabajos previos [6, 7] se realizó un ajuste para seleccionar el modelo de crecimiento más adecuado a partir de datos experimentales térmicos y con irradiación de Brite et al. [8]. Esto llevó a la utilización del modelo propuesto por Ainscough et al. [79]:

$$\frac{dd_g}{dt} = k \left(\frac{1}{d_g} - \frac{1 + 2BU}{d_m} \right) \quad (4.59)$$

en donde d_g [μm] es el tamaño promedio de grano (diámetro), BU [MWd/kgU] es el quemado, k [$\mu\text{m}^2/\text{h}$] es una constante del modelo y d_m [μm] es el tamaño de grano máximo a partir del cual el grano ya no puede crecer.

Ainscough et al. [79] proporcionan valores para k y d_m :

$$k = 5.24 \times 10^7 \exp \left(-\frac{2.767 \text{ [eV]}}{k_b T} \right) \quad (4.60)$$

$$d_m = 2.23 \times 10^3 \exp \left(-\frac{7620}{T} \right) \quad (4.61)$$

Debido a que el efecto promedio es el crecimiento, cuando $dd_g/dt < 0$, a los efectos prácticos en el código se considera $dd_g/dt = 0$.

De acuerdo con Pastore et al. [80], la fracción volumétrica que los bordes de grano “barren” durante su crecimiento es:

$$f_{sweep} = \left[1 - \left(\frac{d_{g,i-1}}{d_{g,i}} \right)^3 \right] \quad (4.62)$$

en donde $d_{g,i-1}$ es el diámetro de grano en el paso de tiempo anterior ($i - 1$) y $d_{g,i}$ es el actual (i).

A partir de la concentración de gas en la red cristalina en el paso anterior ($m_{a,i-1}$), se puede calcular la concentración de gas actual:

$$m_{a,i} = m_{a,i-1} (1 - f_{sweep}) \quad (4.63)$$

Con el nuevo valor de la concentración de gases disueltos en la red, se recalcula la concentración de gases en borde de grano empleando la Ec. (4.50).

Resultados del modelo de hinchamiento intergranular

La disponibilidad de datos experimentales para validar un modelo de burbujas intergranular es poca y con resultados complejos de analizar. Esto se debe a la complejidad que existe para medir burbujas o poros en combustible irradiado y en borde de grano, que presentan geometrías complejas, muchas veces distando de la idealización de una forma lenticular. En una primera aproximación a la validación del modelo, se utilizaron los datos experimentales del *Programa AGR/Halden Ramp Test* (Programa de pruebas de rampa de potencia AGR/Halden) [76]. El objetivo de este trabajo fue lograr un mejor entendimiento de los procesos que contribuyen al hinchamiento de óxidos combustibles bajo irradiación, y su influencia en el fenómeno de interacción vaina-pastilla (PCMI). El combustible utilizado consistió en UO_2 con un enriquecimiento entre 2 y 3% y densidad aproximada del 98 [% TD]. Los combustibles fueron sometidos a un período de irradiación base hasta alcanzar quemados de entre 9 y 21 [MWd/kgU], aproximadamente, para luego someterlos a rampas de potencia rápidas (1 y 2 minutos) y lentas (50 y 70 minutos). Los combustibles fueron sometidos posteriormente a observaciones postirradiación, analizando mediante técnicas de microscopía electrónica la microestructura del combustible en diferentes zonas radiales. Para detalles sobre las condiciones de irradiación puede consultarse la literatura [76].

Como se mencionó previamente, realizar una comparación es dificultosa. En este experimento minucioso, se encontraron que la mayoría de los poros ubicados en bordes de grano estaban constituidos por canales, que se pueden aproximar a un cuerpo prismático de base circular con dos semiesferas en los extremos. Esto, sin lugar a dudas, dista de

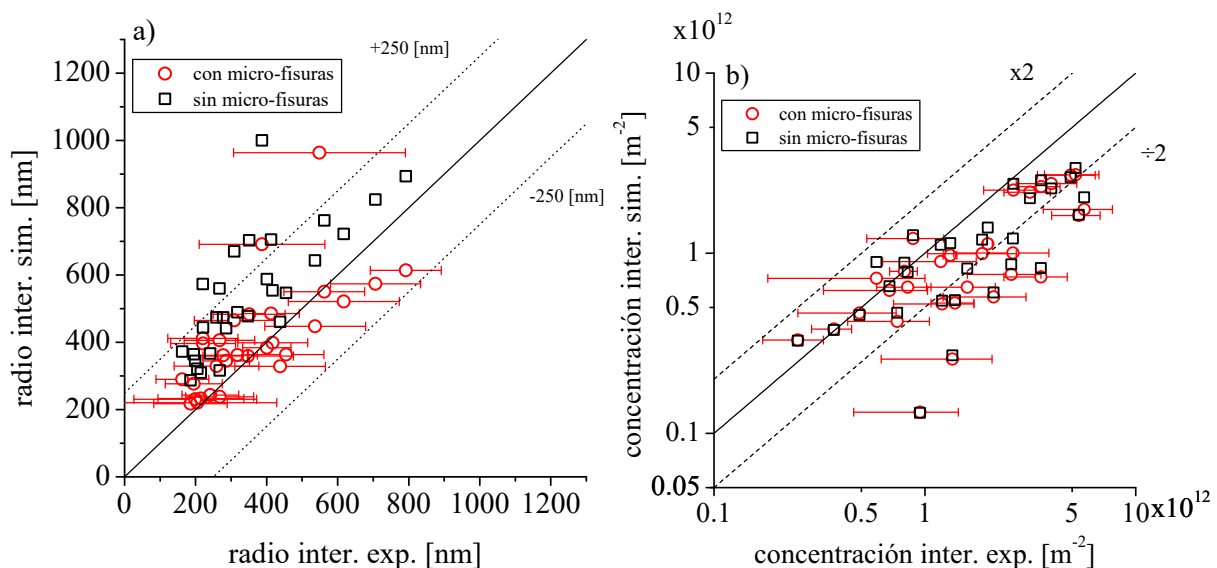


Figura 4.16: Comparación entre el cálculo con el modelo intergranular y los datos experimentales [76] para: a) radio de curvatura de las burbujas intergranulares y b) concentración por unidad de área. En a) Las líneas ± 250 [nm] corresponde a la mayor desviación experimental observada, y en b) las líneas punteadas corresponden a desviaciones en un factor de 2 [52]

la burbuja lenticular modelada. Como en principio, el fin de este modelo es calcular el hinchamiento, es decir, la variación dimensional de la pastilla debida a la acumulación de gases de fisión, a partir de los datos experimentales se calculó el radio de curvatura de una lenteja equivalente con volumen igual al reportado. Entonces, es este el radio equivalente que se usa para comparar con los calculados por el modelo.

En la Figura 4.16 se presentan los resultados para el radio de curvatura de las burbujas lenticulares y su concentración por unidad de área, comparando con los datos experimentales. Se presentan los resultados obtenidos con las simulaciones empleando el modelo de microfisuras y sin él. Para mayor claridad, solo se muestran las desviaciones experimentales para el set de resultados obtenidos con el método de microfisuras. En primer lugar, se puede observar que cuando no se consideran las microfisuras los radios calculados resultan mucho mayores que cuando si se lo toma en cuenta. Esto se debe a que sin la formación de fisuras en los bordes de grano, estos no pierden la capacidad para alojar los átomos de gas que llegan a ellos, por lo que menor cantidad de gas es liberado y las burbujas crecen mucho más. Sin embargo, este modelo no tiene un efecto significativo en la concentración de burbujas como puede verse en la figura b). En general, se observa una sobre-estimación para el radio de las burbujas y una subestimación en la concentración. Esto puede ser a causa de que el modelo de hinchamiento no tiene en cuenta la presencia de poros preexistentes en el combustible. Los poros de fabricación, a diferencia de las burbujas, se modelan con una fuerte capacidad para reducir su tamaño debido al flujo neto de defectos puntuales que se intercambian en su superficie [6]. La llegada de gases de fisión, balancearía las presiones en los poros para estabilizarlos, con lo cual todos los átomos de gas que se consideran que van hacia las burbujas intergranulares, en realidad deberían repartirse entre los poros de fabricación y las burbujas que nuclean. Esto podría reducir el tamaño de burbujas calculado y además aumentar la concentración total de cavidades (poros + burbujas) al tener en cuenta esta población inicial. A pesar de que el combustible empleado en los experimentos, presentó una densidad inicial muy alta (98 [%TD]), la presencia de estos poros, posiblemente en borde de grano por la baja porosidad y los tamaños de granos relativamente grandes que se reportan en la literatura ($R_g > 6$ [μm]), pueden jugar un papel importante, y en las observaciones no existe una diferencia entre poros y burbujas. Además, se ha mostrado en trabajos anteriores [6, 7] que la inclusión de distribuciones de poro es muy importante para analizar los procesos de cambios dimensionales que involucren cavidades en el combustible. Esto hace reflexionar sobre la posibilidad de unificar los modelos de densificación y de hinchamiento para obtener una mejor descripción de todos los procesos microestructurales. Sin embargo, a pesar de la gran fuente de errores experimentales que existen y las simplificaciones realizadas, se observa un buen comportamiento general del modelo.

De manera similar, en la Figura 4.17 se presenta la comparación entre los datos experimentales de hinchamiento porcentual y los calculados con y sin modelo de fisuras.

Aquí se observa con claridad que al utilizar el modelo de microfisuras se alcanzan mejores resultados, encontrándose la mayoría de los puntos en una banda con un factor 2 de desviación del ajuste perfecto.

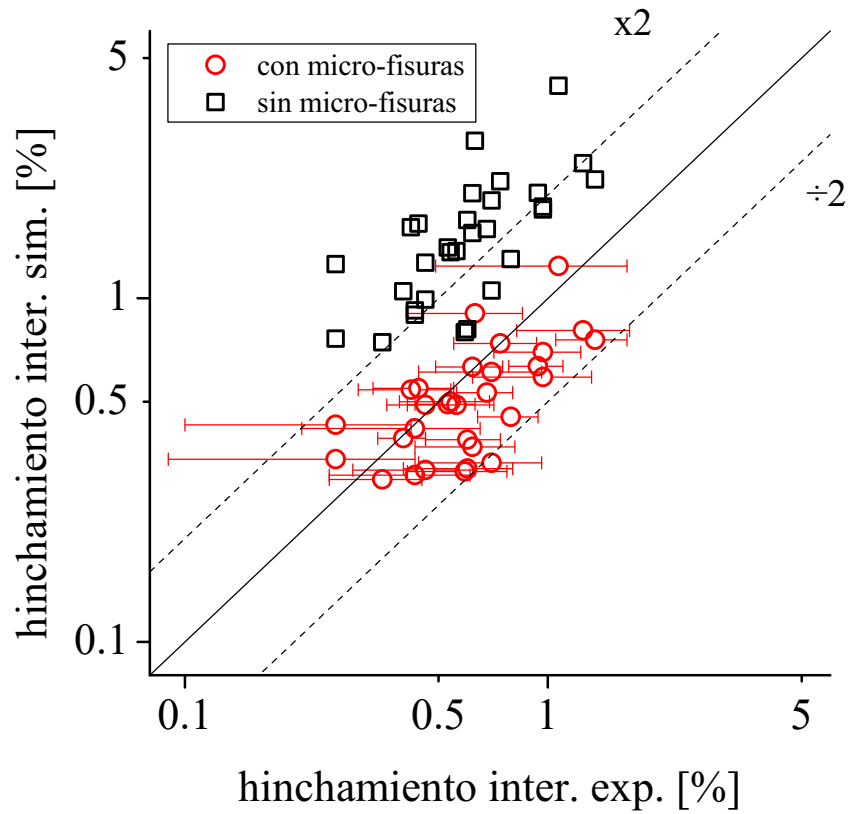


Figura 4.17: Comparación entre el hinchamiento intergranular simulado y los datos experimentales [76].

4.3. Actualización de la porosidad del combustible

En las secciones 4.1 y 4.2 se estableció el cambio dimensional que sufre la pastilla debido a cada uno de los fenómenos involucrados en la densificación y el hinchamiento. El cambio dimensional total debido a estos procesos está dado por:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right) = \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{dens} + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{sól} + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{intra} + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{inter} \quad (4.64)$$

La evolución de la porosidad interna del combustible va a depender de la evolución de las cavidades, es decir, poros y burbujas, y a partir del siguiente razonamiento:

La variación relativa de densidad en términos de fracción de densidad teórica en el paso de tiempo i referida al estado inicial 0, se puede escribir como:

$$\left(\frac{\Delta \delta}{\delta_0}\right)_i = \frac{(1 - P_i) - (1 - P_0)}{(1 - P_0)} = \frac{P_0 - P_i}{1 - P_0} \quad (4.65)$$

en donde P_i y P_0 son las porosidades fraccional actual y a tiempo 0, respectivamente

Entonces, la diferencia de variación relativa entre el paso actual y el anterior es:

$$\left(\frac{\Delta \delta}{\delta_0}\right)_i - \left(\frac{\Delta \delta}{\delta_0}\right)_{i-1} = \frac{P_{i-1} - P_i}{1 - P_0} \quad (4.66)$$

Reemplazando la Ec. (4.17) en la expresión anterior:

$$\frac{P_{i-1} - P_i}{1 - P_0} = \frac{-\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_i}{1 + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_i} - \frac{-\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{i-1}}{1 + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{i-1}} \quad (4.67)$$

Además, si los pasos de tiempos son tales que los denominadores del miembro derecho de la Ec. (4.67) se puedan considerar iguales y se reordena dicha expresión, se obtiene:

$$P_i \cong P_{i-1} + (1 - P_0) \left[\frac{\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_i - \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{i-1}}{1 + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{i-1}} \right] \quad (4.68)$$

en donde la variación relativa de volumen no debe incluir la correspondiente al hinchamiento por productos sólidos de fisión ya que no participan en el cambio de porosidad.

Este cálculo de porosidad resulta esencial para poder actualizar la conductividad térmica del combustible ya que depende fuertemente de este parámetro [81].

Referencias

- [1] D. R. Olander. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. Technical Information Center, Office of Public Affairs, Energy Research y Development Administration, 1976.
- [2] H. Bailly, C. Prunier y Ménessier. *The Nuclear Fuel of Pressurized Water Reactors and Fast Neutron Reactors: Design and Behaviour*. Intercept Limited, 1999.
- [3] J. Rest, M. W. D. Cooper, J. Spino, J. A. Turnbull, P. V. Uffelen y C. T. Walker. “Fission gas release from UO₂ nuclear fuel: A review”. *Journal of Nuclear Materials* 513 (2018). DOI: 10.1016/j.jnucmat.2018.08.019.
- [4] A. M. Ross. “Irradiation behaviour of fission-gas bubbles and sintering pores in UO₂”. *Journal of Nuclear Materials* 30.1-2 (1969), págs. 134-142. DOI: 10.1016/0022-3115(69)90175-5.
- [5] D. A. Banks. “Some observations of density and porosity changes in UO₂ fuel irradiated in water-cooled reactors.” *Journal of Nuclear Materials* 54 (1974), págs. 97-107. DOI: 10.1016/0022-3115(74)90080-4.
- [6] M. E. Cazado y A. Denis. “Model of nuclear fuel pellets densification under irradiation and isothermal conditions: Application to UO₂ fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 510 (2018), págs. 585-595. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2018.08.029.
- [7] M. E. Cazado. “Evolución microestructural en pastillas combustibles bajo irradiación. Master’s Thesis ITS/TM 206/19”. Master Thesis. Universidad Nacional de San Martín, 2019.
- [8] D. W. Brite, J. L. Daniel, N. C. Davis, M. D. Freshley, P. E. Hart y R. K. Marshall. *EEI/EPRI Fuel Densification Project. Report, EPRI-131*. Inf. téc. 1975.
- [9] Y. Harada y S. Doi. “Irradiation Behavior of Large Grain UO₂ Fuel Rod by Active Powder”. *Journal of Nuclear Science and Technology* 35.6 (1998), págs. 411-418. DOI: 10.1080/18811248.1998.9733883.
- [10] V. I. Tarasov y M. S. Veshchunov. “Models for fuel porosity evolution in UO₂ under various regimes of reactor operation”. *Nuclear Engineering and Design* 272 (2014), págs. 65-83. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2014.02.016.
- [11] V. D. Ozrin y V. I. Tarasov. “Model for Evolution of As-Fabricated Pores in UO₂ Fuel under Irradiation Conditions”. *Proceedings of IBRAE RAS. Issue 5: Models for Fission Products Release from Irradited UO₂ Fuel*. Ed. por L. A. Bolshova. Moscow: Nauka: Nuclear Safty Institute (IBRAE) RAS, 2008.
- [12] R. J. White y M. O. Tucker. “A new fission-gas release model”. *Journal of Nuclear Materials* 118.1 (1983), págs. 1-38. DOI: 10.1016/0022-3115(83)90176-9.
- [13] K. Leschonski. “Representation and Evaluation of Particle Size Analysis Data”. *Particle Characterization* 1.3 (1984), págs. 89-95. DOI: 10.1002/ppsc.19840010115.
- [14] C. C. Dollins. “In-pile densification of intergranular porosity in oxide fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 82.2 (1993), págs. 302-310. DOI: 10.1016/0022-3115(79)90013-8.
- [15] H. Assmann y H. Stehle. “Thermal and in-reactor densification of UO₂: Mechanisms and experimental results”. *Nuclear Engineering and Design* 48.1 (1978), págs. 49-67. DOI: 10.1016/0029-5493(78)90208-X.
- [16] H. Stehle y H. Assmann. “The dependence of in-reactor UO₂ densification on temperature and microstructure”. *Journal of Nuclear Materials* 52 (1974), págs. 303-308.

- [17] H. Stehle y H. Assmann. “In-Reactor UO_2 densification”. *Journal of Nuclear Materials* 61.3 (1976), págs. 326-329. DOI: 10.1016/0022-3115(76)90273-7.
- [18] C. B. Alcock, R. J. Hawkins, A. W. D. Hills y P. McNamara. “A study of cation diffusion in stoichiometric UO_2 using in α -ray spectrometry”. *Proceedings of a Symposium on Thermodynamics with Emphasis on Nuclear Materials and Atomic Transport in Solids*. STI/PUB/10. Vienna: IAEA, 1966.
- [19] B. Auskern y J. Belle. “Uranium ion self-diffusion in UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 3.3 (1961), págs. 311-319. DOI: 10.1016/0022-3115(61)90199-4.
- [20] J. Marin y P. Contamin. “Uranium and oxygen self-diffusion in UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 30.1-2 (1969), págs. 16-25. DOI: 10.1016/0022-3115(69)90164-0. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0022311569901640>.
- [21] H. Matzke. “Atomic transport properties in UO_2 and mixed oxides (U, Pu) O_2 ”. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 2* 83.7 (1987), pág. 1121. DOI: 10.1039/f29878301121. URL: <http://xlink.rsc.org/?DOI=f29878301121>.
- [22] D. K. Reimann y T. S. Lundy. “Diffusion of ^{233}U in UO_2 ”. *Journal of the American Ceramic Society* 52.9 (1969), págs. 511-512. DOI: 10.1111/j.1151-2916.1969.tb09206.x.
- [23] G. L. Reynolds y B. Burton. “Grain-boundary diffusion in uranium dioxide: The correlation between sintering and creep and a reinterpretation of creep mechanism”. *Journal of Nuclear Materials* 82.1 (1979), págs. 22-25. DOI: 10.1016/0022-3115(79)90035-7.
- [24] A. C. S. Sabioni, W. B. Ferraz y F. Millot. “First study of uranium self-diffusion in UO_2 by SIMS”. *Journal of Nuclear Materials* 257.2 (1998), págs. 180-184. DOI: 10.1016/S0022-3115(98)00482-6.
- [25] A. C. Sabioni, W. B. Ferraz y F. Millot. “Effect of grain-boundaries on uranium and oxygen diffusion in polycrystalline UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 278.2 (2000), págs. 364-369. DOI: 10.1016/S0022-3115(99)00250-0.
- [26] S. Yajima, H. Furuya y T. Hirai. “Lattice and grain-boundary diffusion of uranium in UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 20.2 (1966), págs. 162-170. DOI: 10.1016/0022-3115(66)90004-3.
- [27] M. S. Veshchunov y V. E. Shestak. “An advanced model for intragranular bubble diffusivity in irradiated UO_2 fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 376.2 (2008), págs. 174-180. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2008.01.026.
- [28] A. S. Boyarchenkov, S. I. Potashnikov, K. A. Nekrasov y A. Y. Kupryazhkin. “Investigation of cation self-diffusion mechanisms in $\text{UO}_{2\pm x}$ using molecular dynamics”. *Journal of Nuclear Materials* 442.1-3 (2013), págs. 148-161. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.08.030.
- [29] G. Maier, H. Assmann y W. Dörr. “Resinter testing in relation to in-pile densification”. *Journal of Nuclear Materials* 153.C (1988), págs. 213-220. DOI: 10.1016/0022-3115(88)90213-9.
- [30] S. C. Chapra y R. P. Canale. *Numerical Methods for Engineers*. McGraw-Hill Education, 2015.
- [31] “A molecular dynamics study of radiation induced diffusion in uranium dioxide”. *Journal of Nuclear Materials* 385.2 (2009), págs. 351-357. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2008.12.010.
- [32] N. L. Peterson. “Grain-boundary diffusion in metals”. 28.1 (1983), págs. 65-91. DOI: 10.1179/imtr.1983.28.1.65.
- [33] G. Small. “Densification of uranium dioxide at low burn-up”. *Journal of Nuclear Materials* 148.3 (1987), págs. 302-315. DOI: 10.1016/0022-3115(87)90024-9.

- [34] V. V. Basov. “Developing a Procedure for the Repeated heat treatment (Resintering) of UO₂ Fuel Pellets”. *Russian Journal of Non-Ferrous Metals* 50.4 (2009), págs. 404-407. DOI: 10.3103/S1067821209040191.
- [35] P. M. E. Cunningham, E. R. Bradley, J. L. Daniel, N. C. Davis, D. D. Lanning y R. E. Williford. *Precharacterization report for Instrumented Fuel Assembly (IFA)-527*. Inf. téc. 1981.
- [36] C. R. Hann, J. L. Bates, D. W. Brite, J. L. Daniel, N. C. Davis, P. E. Hart, R. K. Marshall, G. B. Mellinger y R. E. Williford. *Test design, precharacterization, and fuel assembly fabrication for instrumented fuel assemblies IFA-431 and IFA-432*. Inf. téc. 1977.
- [37] A. Bouloré. “Étude et modelisation de la densification en pile des oxydes UO₂ et MOX”. Tesis doct. Institut National Polytechnique de Grenoble, 2001.
- [38] G. Khvostov, K. Mikityuk y M. A. Zimmermann. “A model for fission gas release and gaseous swelling of the uranium dioxide fuel coupled with the FALCON code”. *Nuclear Engineering and Design* 241.8 (2011), págs. 2983-3007. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2011.06.020.
- [39] A. D. Brailsford y R. Bullough. “The Theory of Sink Strengths”. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London - A* 302 (1981).
- [40] V. G. Baranov, A. V. Lunev, A. V. Tenishev y A. V. Khulunov. “Interaction of dislocations in UO₂ during high burn-up structure formation”. *Journal of Nuclear Materials* 444.1-3 (2014), págs. 129-137. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.09.042.
- [41] P. T. Heald. “The preferential trapping of interstitials at dislocations”. *Philosophical Magazine* 31.3 (1975), págs. 551-558. DOI: 10.1080/14786437508226537.
- [42] 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* 374.1-2 (2008), págs. 32-43. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.06.020.
- [43] F. Anselin. *The role of fission products in the swelling of irradiated UO₂ and (U,Pu)O₂ fuel*. Inf. téc. GEAP-5583. California, United States: U. S. Atomic Energy Commission, 1968.
- [44] P. Van Uffden y M. Suzuki. “Oxide Fuel Performance Modeling and Simulations”. *Comprehensive Nuclear Materials, Volume 3: Advanced Fuels/Fuel Cladding/Nuclear Fuel Performance Modeling and Simulation*. Ed. por R. J. M. Konings. Elsevier Science, 2012.
- [45] M. E. González, J. Campos, M. Cazado y A. Soba. “Desarrollo de un módulo de especies integrado al código DIONISIO”. *Mecánica Computacional Vol. XXXIX*. Ed. por F. E. Dotti, M. Febbo, S. P. Machado, M. Saravia y M. A. Storti. Bahía Blanca - Argentina, 2022.
- [46] R. Williamson. “Enhancing the ABAQUS thermomechanics code to simulate multipellet steady and transient LWR fuel rod behavior”. *Journal of Nuclear Materials* 415.1 (2011), págs. 74-83. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2011.05.044.
- [47] W. G. Luscher, K. J. Geelhood e I. E. Porter. *Comparisons between FRAPCON-4.0, FRAPCON-2.0, and MATPRO*. Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, USA, 2015.
- [48] J. Spino, J. Rest, W. Goll y C. T. Walker. “Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO₂ fuels at high burn-up”. *Journal of Nuclear Materials* 346 (2005), págs. 97-107.
- [49] P. Lösönen. “On the behaviour of intragranular fission gas in UO₂ fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 280 (2000), págs. 56-72.
- [50] T. Barani, G. Pastore, A. Magni, D. Pizzocri, P. Van Uffelen y L. Luzzi. “Modeling intra-granular fission gas bubble evolution and coarsening in uranium dioxide during in-pile transients”. *Journal of Nuclear Materials* 538 (2020), págs. 152-195.

- [51] S. Kashibe, K. Une y K. Nogita. “Formation and growth of intragranular fission gas bubbles in UO_2 fuels with burnup of 6-83 GWd/t”. *Journal of Nuclear Materials* 206 (1993), págs. 22-34.
- [52] D. Pizzocri, G. Pastore, T. Barani, A. Magni, L. Luzzi, P. Van Uffelen, S. A. Pitts, A. Alfonsi y J. D. Hales. “A model describing intra-granular fission gas behaviour in oxide fuel for advanced engineering tools”. *Journal of Nuclear Materials* 502 (2018), págs. 323-330.
- [53] A. Denis y R. Piotrkowski. “Simulation of isothermal fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* 229 (1996), págs. 149-154.
- [54] K. Lassmann y H. Benk. “Numerical algorithms for intragranular fission gas release”. *Journal of Nuclear Materials* 280 (2000), págs. 127-135.
- [55] G. Pastore, L. Luzzi, V. Di Marchello y P. Van Uffelen. “Physics-based modelling of fission gas swelling and release in UO_2 applied to integral fuel rod analysis”. *Nuclear Engineering and Design* 256 (2013), págs. 75-86.
- [56] K. Forsberg y A. R. Massih. “Fission gas release under time-varying conditions”. *Journal of Nuclear Materials* 127 (1985), págs. 141-145.
- [57] K. Forsberg y A. R. Massih. “Diffusion theory of fission gas migration in irradiated nuclear fuel UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 135 (1985), págs. 140-148.
- [58] D. R. Olander y D. Wongsawaeng. “Re-resolution of fission gas - A review: Part I. Intragranular bubbles”. *Journal of Nuclear Materials* 354 (2006), págs. 94-109.
- [59] J. A. Turnbull. “The distribution of intragranular fission gas bubbles in UO_2 during irradiation”. *Journal of Nuclear Materials* 38 (1971), págs. 203-212.
- [60] C. Baker. “The fission gas bubble distribution in uranium dioxide from high temperature irradiated SGHWR fuel pins”. *Journal of Nuclear Materials* 66 (1977), págs. 283-291.
- [61] H. Matzke. “Xenon migration and trapping in doped ThO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 21 (1967), págs. 190-198.
- [62] P. Lösson. “Modelling intragranular fission gas release in irradiation of sintered LWR UO_2 fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 304 (2002), págs. 29-49.
- [63] J. A. Turnbull, R. J. White y C. Wise. “The diffusion coefficient for fission gas atoms in uranium dioxide”. *Water Reactor Fuel Element Computer Modelling in Steady State, Transient and Accident Conditions*. Ed. por D. Davies y G. Long. Vienna, Austria, 1988.
- [64] F. S. Ham. “Theory of diffusion-limited precipitation”. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 6 (1958), págs. 335-351.
- [65] K. Govers, C. L. Bishop, D. C. Parfitt, S. E. Lemehov, M. Verwerft y R. W. Grimes. “Molecular dynamics study of Xe bubble re-resolution in UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 420 (2012), págs. 282-290.
- [66] R. M. Cornell. “An electron microscope examination of matrix fission-gas bubbles in irradiated uranium dioxide”. *Journal of Nuclear Materials* 38 (1971), págs. 319-328.
- [67] J. A. Turnbull y M. O. Tucker. “Swelling in UO_2 under conditions of gas release”. *Philosophical Magazine* 30 (1974), págs. 47-63.
- [68] S. Kashibe y K. Une. “Effect of external restraint on bubble swelling in UO_2 fuels”. *Journal of Nuclear Materials* 247 (1997), págs. 138-146.
- [69] A. R. Massih y K. Forsberg. “Calculation of grain boundary gaseous swelling in UO_2 ”. *Journal of Nuclear Materials* 377 (2008), págs. 406-408.

- [70] F. Rest. “Modeling of Fission-Gas-Induced Swelling of Nuclear Fuels”. *Comprehensive Nuclear Materials, Volume 3: Advanced Fuels/Fuel Cladding/Nuclear Fuel Performance Modeling and Simulation*. Ed. por R. J. M. Konings. Elsevier Science, 2012.
- [71] R. J. White. “The development of grain-face porosity in irradiated oxide fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 325 (2004), págs. 61-77.
- [72] Idaho National LaboratorD. *BISON: A Finite Element-Based Nuclear Fuel Performance Code*. <https://mooseframework.inl.gov/bison/>, Último acceso el 29-11-2022.
- [73] M. S. Veshchunov. “Modelling of grain face bubbles coalescence in irradiated UO₂ fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 374 (2008), págs. 44-53. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.06.021.
- [74] M. J. F. Notley y J. R. MacEwan. “Stepwise release of fission gas from UO₂ fuel”. *Nuclear Applications* 2 (1966), págs. 477-480.
- [75] R. M. Carroll, J. G. Morgan, R. B. Perez y O. Sisman. “Fission density, burnup, and temperature effects on fission-gas release from UO₂”. *Nuclear Science and Technology* 38 (1969), págs. 143-155.
- [76] R. J. White, R. C. Corcoran y P. J. Barnes. *A Summary of Swelling Data Obtained from the AGR/Halden Ramp Test Programme*. Inf. téc. R&T/NG/EXT/REP/0206/02, Issue 5. British Energy Generation Ltd, 2006.
- [77] I. J. Hastings, A. D. Smith, P. J. Fehrenbach y T. J. Carter. “Fission gas release from power-ramped UO₂ fuel”. *Journal of Nuclear Materials* 139 (1986), págs. 106-112.
- [78] T. Barani, E. Bruschi, D. Pizzocri, G. Pastore, P. Van Uffelen, R. L. Williamson y L. Luzzi. “Analysis of transient fission gas behaviour in oxide fuel using BISON and TRANSURANUS”. *Journal of Nuclear Materials* 486 (2017), págs. 96-110.
- [79] J. B. Ainscough, B. W. Oldfield y J. O. Ware. “Isothermal grain growth kinetics in sintered UO₂ pellets”. *Journal of Nuclear Materials* 49 (1973), págs. 117-128.
- [80] 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.
- [81] 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* 374.1-2 (2008), págs. 32-43. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.06.020.

5. Resultados integrales de barras combustibles

En los capítulos anteriores se mostraron diferentes ejemplos de experimentos para validar los modelos desarrollados durante este trabajo, en los cuales se encontraron buenos resultados al comparar las simulaciones con las medidas experimentales. A continuación se presenta una serie de comparaciones entre la nueva herramienta desarrollada DIO-SCF con los modelos de crecimiento por irradiación, densificación e hinchamiento trabajando en forma acoplada.

CONTACT 1, 2 y 2 bis

La serie de experimentos CONTACT fue un programa de ensayos realizado en el reactor Siloe de Grenoble [1, 2]. Se trataba de barras cortas de pastillas de UO_2 con vainas de Zircaloy-4 de diseño típico PWR 17x17. El objetivo de los experimentos era mejorar la comprensión del comportamiento de las barras combustibles. En este experimento se midieron, principalmente, temperatura central de la pastilla, variación del diámetro de la vaina y se estimó la liberación de gases de fisión a partir de mediciones del isótopo ^{85}Kr que posee una vida media prolongada.

Cada barra contenía 5 pastillas combustibles de calidad comercial estándar provistas por FRAMATONE. CONTACT 1 fue irradiado a un nivel de potencia constante cercano a 400 [W/cm] hasta un quemado de ~ 22 [MWd/kgU]. CONTACT 2 fue irradiado a una potencia constante de ~ 250 [W/cm]. Esta barra fue sacada del experimento prematuramente debido a una falla a un quemado de ~ 5.5 [MWd/kgU] y sustituida por la barra de diseño idéntico CONTACT 2bis (CONTACT 2B). CONTACT 2 B se irradió a ~ 250 [W/cm] de potencia lineal hasta alcanzar un quemado de $\sim 12,4$ [MWd/kgU] tras sufrir una nueva falla en el sistema.

En la Tabla 5.1 se muestran los datos geométricos y los parámetros operacionales más relevantes informados en el experimento.

En el experimento no se informaron datos sobre el tamaño de grano promedio del combustible. Sin embargo, a partir de una ceramografía de una sección pulida de un combustible del CONTACT 2B, se informa un tamaño de grano aproximado entre 6 y 8 [μm], por lo que en este trabajo se eligió 7 [μm].

En los informes no se reportó la distribución de porosidad; sin embargo, se indicó que las pruebas de re-sinterización, realizadas con pastillas calentadas durante 20 horas a 1993 [K] en atmósfera de hidrógeno para mantener la estequiometría, mostraron una densificación de ~ 1 [% TD], medida por inmersión en alcohol. A partir de este dato, se empleó el nuevo módulo de DIONISIO, WIRR, para seleccionar una distribución de

las distintas posibilidades que ofrece el código. Basándonos en este estudio, se determinó que una distribución monomodal con una mediana en volumen del radio de los poros de 2 [μm] (con porosidad intergranular) logra una densificación térmica de 1.2 [% TD] aproximadamente, al simular el ensayo de re-sinterizado mencionado. Esta distribución es la seleccionada para realizar todas las simulaciones de los experimentos CONTACT. En todos los casos las pastillas combustibles fueron perforadas para ubicar las termocuplas, por lo que las ejecuciones se realizaron siguiendo dicha geometría.

Tabla 5.1: Dimensiones, parámetros de irradiación y principales características de la serie de experimentos CONTACT [1, 2]

ítem	parámetro	1	2	2B
combustible	material	UO ₂		
	largo [mm]	14		
	diámetro [mm]	8.19		
	diámetro central [mm]	1.3 - para la termocupla		
	tamaño de grano [μm]	7		
	número de pastillas	5		
	enriquecimiento ²³⁵ U %	4.95		
	densidad [% TD]	95		
Vaina	material	Zircaloy-4		
	condición	tratamiento para aliviar tensiones		
	diámetro interno [mm]	8.36		
	diámetro externo [mm]	9.50		
	temperatura externa [°/K]	330 / 603		
plenum	largo [mm]	7.7		
parámetros de irradiación	potencia lineal nominal [W/cm]	400	250	
	flujo rápido [(n/cm ² s)/(W/cm)]	1.625×10 ¹¹	1.8×10 ¹¹	
presión	presión interna de la barra [MPa]	1.0 (He)	0.1-0.2 (He)	
	presión del sistema [MPa]	13		

El material utilizado para la vaina fue Zircaloy-4 con un tratamiento para aliviar tensiones. A partir de datos para el experimento TRIBULATION [3], en el que utiliza el mismo material, se seleccionó un trabajado en frío del 60 %, 10 [μm] de tamaño de grano y de Fong [4] se obtuvieron los factores de Kearns $f_{zz} = 0.18$, $f_{rr} = 0.54$ y $f_{\theta\theta} = 0.28$.

Los resultados que se muestran a continuación se realizaron con el acople DIONISIO–SubChanFlow (DIO-SCF) en conjunto con los nuevos modelos incorporados de densificación, hinchamiento y crecimiento por irradiación. Además, para el caso CONTACT 1 se muestra una comparación con el código en su versión anterior, indicado como DIO.

En la Figura 5.1 se presentan las historias de potencia construidas para la utilización en el código a partir de los datos aportados en los experimentos para los distintos casos CONTACT.

En primer lugar, se analizó la temperatura central y la liberación porcentual de gases de fisión (FGR) para el caso CONTACT 1 utilizando la versión actual y anterior del

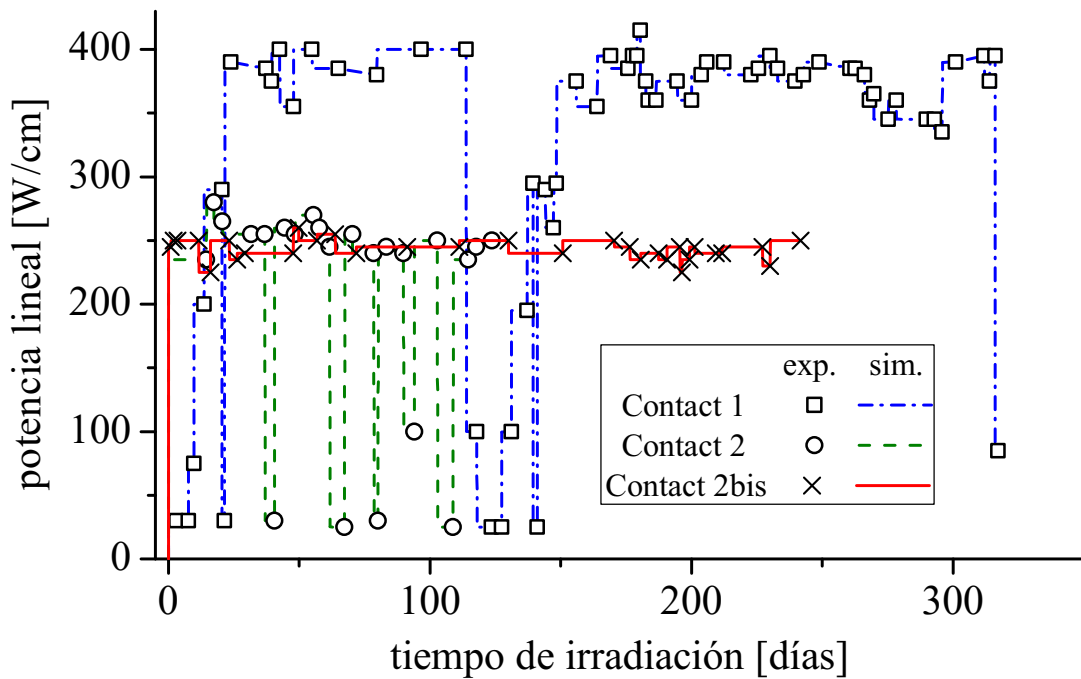


Figura 5.1: Historias de potencia para la serie de experimentos CONTACT.

código. En la Figura 5.2 a) se muestra la evolución de la temperatura en función del quemado del combustible obtenido con ambos cálculos y la comparación con los datos experimentales. Las barras de error corresponden a $\pm 3\%$ de la medida obtenida por medio de termocuplas de W-Re, de acuerdo a Cunningham et al. [5]. Como puede verse, para el caso térmico no existe una diferencia significativa entre los códigos y los valores obtenidos ajustan bien a los datos experimentales. En el sector b) de la figura se observa la evolución de la liberación de gases de fisión. Si bien se observan ciertas desviaciones (sobre-estimaciones en el rango de quemado entre 3 y 7 [MWd/kgU]) utilizando DIO-SCF, se alcanza un valor final de liberación que coincide con el experimental. Por otro

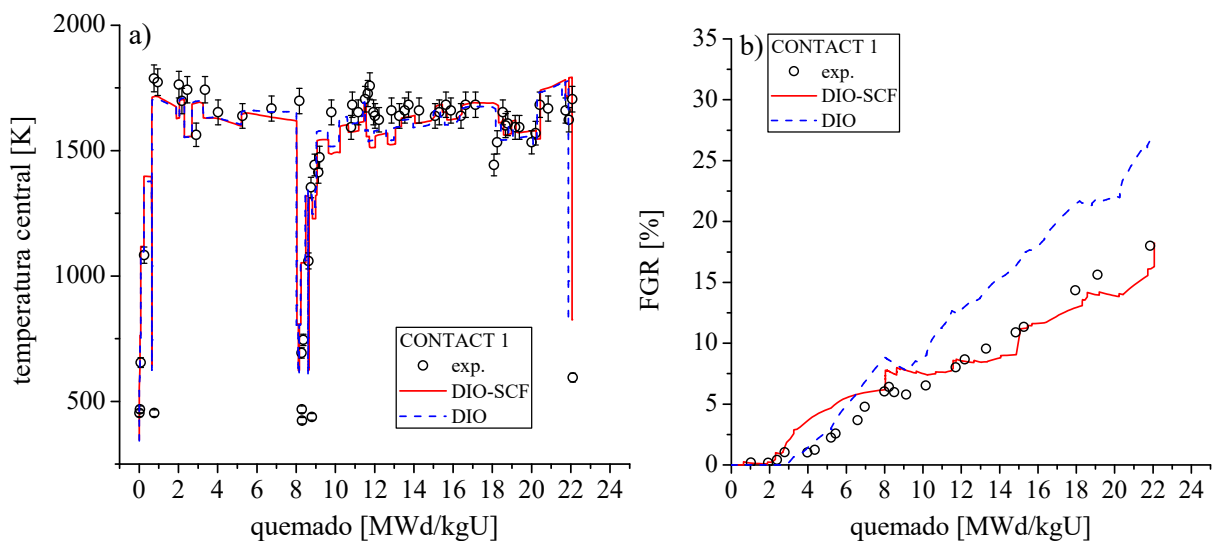


Figura 5.2: Evolución de a) la temperatura central de la pastilla y b) la liberación de gases de fisión en función del quemado para el caso CONTACT 1.

lado, con la versión previa del código se obtiene una liberación final 50 % más alta que la medida. Esta liberación en exceso por parte de DIONISIO hace que la cantidad de gases retenidos en la matriz del combustible disminuya y, por lo tanto, el efecto del *swelling* es menor: su impacto se mencionará a continuación. A pesar de las desviaciones observadas, el comportamiento del acople es satisfactorio, considerando que los datos experimentales son estimaciones a partir de mediciones del isótopo ^{85}Kr .

En la Figura 5.3 se presentan la evolución de la variación del diámetro externo en a) y la del *gap* de la barra combustible en b). En cuanto a la variación del diámetro, se puede observar una primera etapa denominada *creep down* debido al efecto de la termo fluencia de la vaina combustible que hace disminuir su diámetro. Luego, a partir de aproximadamente 6 [MWd/kgU], el acople muestra un aumento en el diámetro, obteniendo buenos resultados al comparar con los datos experimentales. Este aumento del diámetro se debe a que la pastilla acumula los gases de fisión en las burbujas intra- e intergranulares y productos sólidos de fisión que producen un hinchamiento que modifica las dimensiones de la pastilla. A medida que aumenta el *swelling*, el *gap* se va cerrando hasta que, finalmente, la pastilla hace contacto con la vaina, generando tensiones en la misma que la deforman. Un mayor hinchamiento en conjunto con una menor densificación hace que el contacto comience más temprano. Este es el caso del acople, en donde se alcanza una variación relativa porcentual final de la pastilla de alrededor de 4%. Por el contrario, la versión anterior del código presenta una menor deformación en la vaina, debido a que los modelos que contienen logran una mayor densificación y menor hinchamiento, obteniéndose una menor deformación en conjunto de la pastilla (2%). Para ejemplificar mejor el contacto, en b) se muestra la evolución del *gap*. Allí puede observarse que para el caso del acople, el contacto ocurre a ~ 6 [MWd/kgU], mientras que DIO simula un contacto posterior a ~ 10 [MWd/kgU]. Los valores alcanzados con DIO-SCF son consistentes con el experimento,

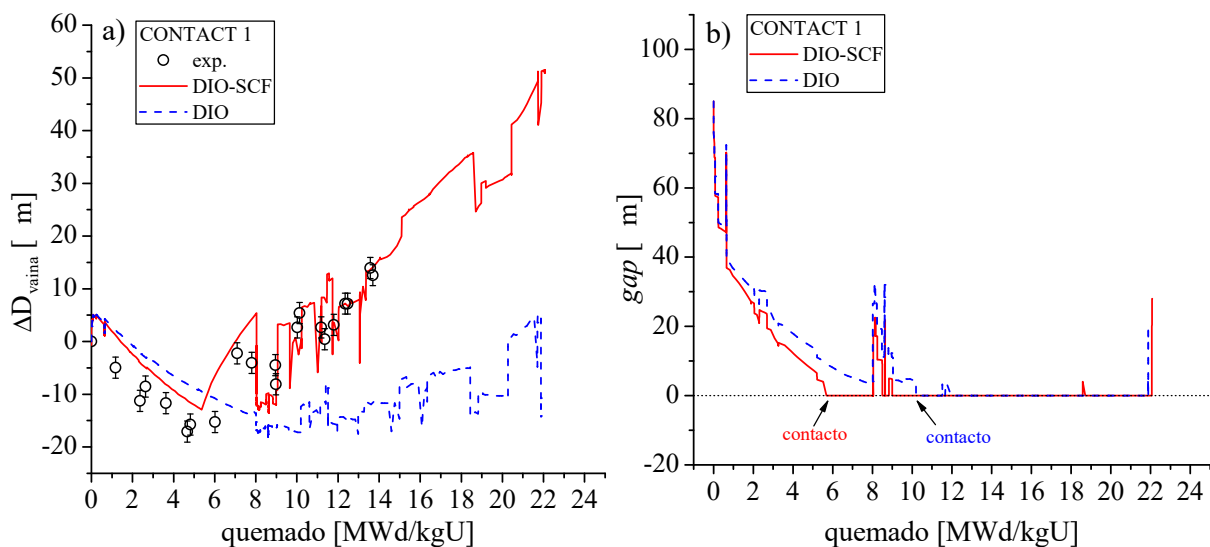


Figura 5.3: Evolución de a) la variación del diámetro exterior de la vaina y b) el *gap* entre la pastilla y la vaina en función del quemado para el caso CONTACT 1. Las barras de error corresponden a ± 2 [μm]

en el que se estima que el contacto ocurre entre 6 y 8 [MWd/kgU].

Para visualizar la mejora que se introdujo en DIONISIO en cuanto a la descripción de la porosidad, en la Figura 5.4 se muestra el perfil de porosidad final en función del radio de la pastilla. Mientras que DIONISIO presenta una porosidad prácticamente uniforme de alrededor de 6-7%, la nueva versión muestra un gradiente importante, con $\sim 10\%$ hacia el centro de la pastilla y $\sim 5\%$ en la periferia. Esta nueva descripción, que es consistente con observaciones realizadas en otros experimentos [5], se debe a que los modelos de densificación e hinchamiento dependen fuertemente de la temperatura.

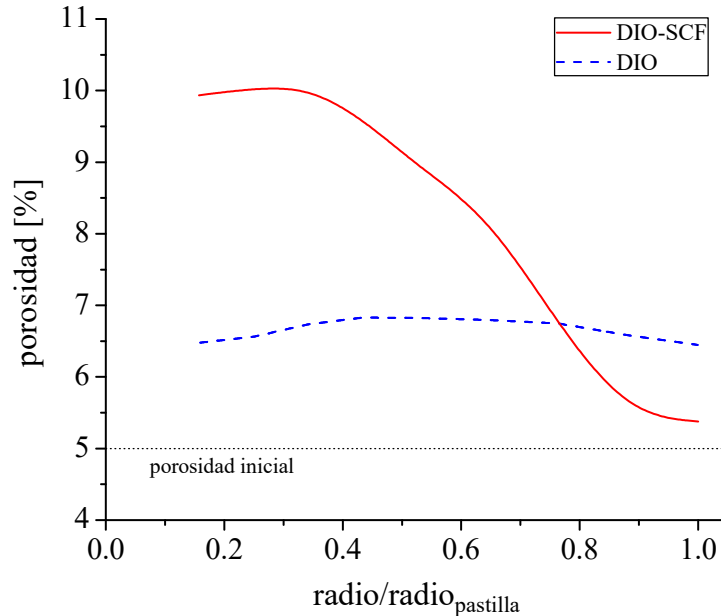


Figura 5.4: Comparación entre los códigos para el perfil de porosidad final de una pastilla del caso CONTACT 1.

Finalmente, en las Figuras 5.5, 5.6, se muestran la evolución de la temperatura, FGR, variación del diámetro y *gap* para los casos CONTACT 2 y 2B, calculadas con la nueva herramienta desarrollada en este trabajo. En cuanto a la temperatura, se observa un muy buen comportamiento para los dos casos mostrados. En la Figura 5.5, se muestran que los valores de FGR calculados para estos casos es significativamente menor que CONTACT 1, debido a las menores temperaturas que alcanzan las pastillas. Además, se pueden observar desviaciones con respecto a las medidas experimentales, en especial para el caso CONTACT 2B. En este caso, la máxima liberación medida corresponde a un 0.6%, mientras que en el cálculo se alcanza un 2.6%. Para el caso CONTACT 2, se midió 0.08% de FGR y en el código se obtuvo 0.13%. La liberación hasta un 10% resulta ser compleja de simular mediante códigos de combustible [6], debido a su proximidad con el umbral al cual comienza la liberación (entre 1 y 2%), lo cual conlleva a que pequeños cambios en los parámetros involucrados generen grandes variaciones en la liberación de gases. Considerando que el rango de tolerancia asociado generalmente a los cálculos de FGR es de un factor de ± 2 , e incluso ± 3 para niveles de liberación menores al 10% [6], el comportamiento

general del modelo es satisfactorio.

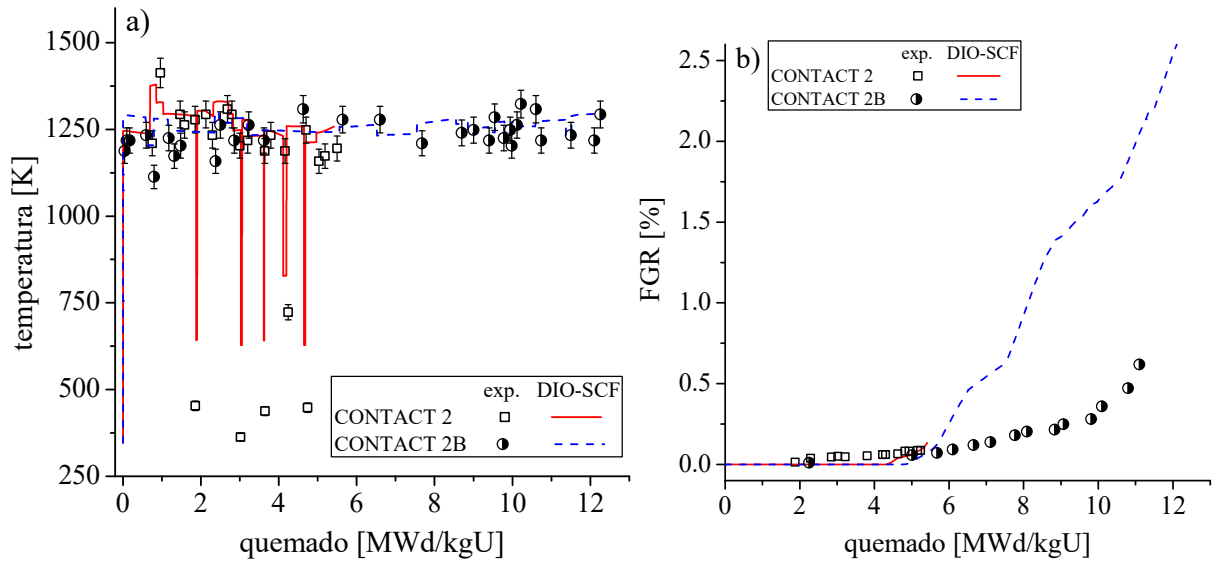


Figura 5.5: Evolución de a) la temperatura central de la pastilla y b) la liberación de gases de fisión en función del quemado para los casos CONTACT 2 y 2B.

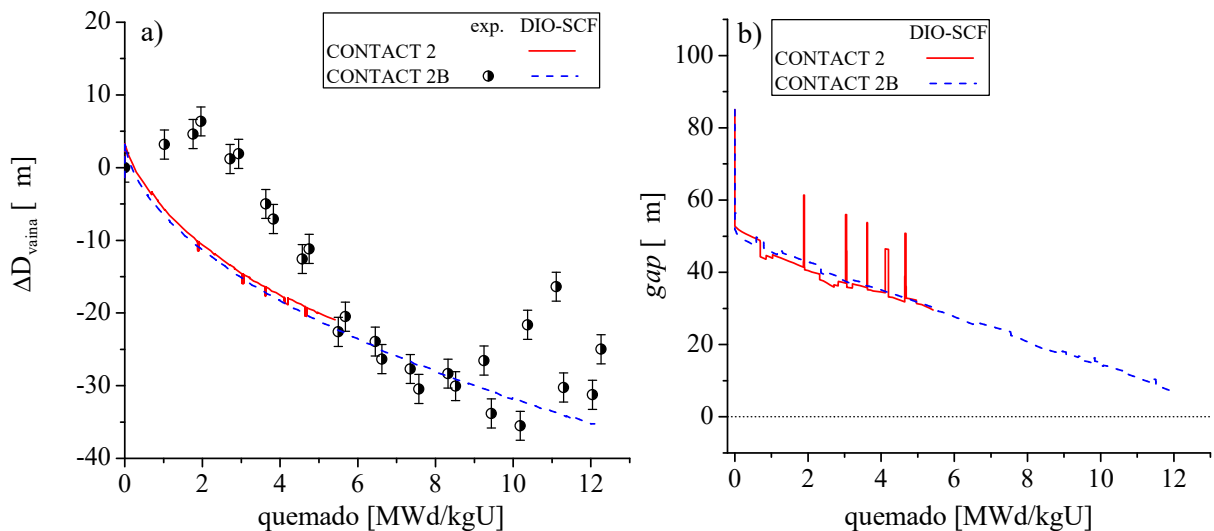


Figura 5.6: Evolución de a) la variación del diámetro exterior de la vaina y b) el gap entre la pastilla y la vaina en función del quemado para los casos CONTACT 2 y 2B.

En cuanto a la vaina, experimentalmente se observa un aumento en el diámetro de origen desconocido en la etapa inicial de irradiación hasta alcanzar 2 [MWd/kgU] (Figura 5.6 a)). Luego, el diámetro descende, debido al *creep* por irradiación, hasta estabilizarse a aproximadamente 30 [μm] de diferencia con respecto al valor inicial, y a partir de 10 [MWd/kgU] surgen nuevas dispersiones de las mediciones. Esto podría indicar la existencia de contacto aunque no estuvo especificada en el informe. Con respecto a las simulaciones, el código muestra el comportamiento esperable, aunque sin alcanzar el contacto durante la historia de potencia ensayada (Figura 5.6). Esto se debe a las temperaturas inferiores del experimento para CONTACT 2 y 2B con respecto al CONTACT 1.

US-PWR

Los experimentos del programa US-PWR 16x16 LTA para alto quemado se diseñaron para observar el comportamiento de barras combustibles mejoradas con vainas de Zircaloy-4 hasta alcanzar quemados cercanos a 60 [MWd/kgU]. Las irradiaciones se realizaron en un reactor comercial estadounidense tipo PWR. El diseño de las barras combustibles de aproximadamente 4 metros de longitud consistió en pastillas de UO₂ enriquecidas, sólidas para algunas barras y huecas en otras, recubiertas con una vaina de Zircaloy-4. Las barras combustibles se presurizaron con He. Dos de las barras ensayadas se utilizaron para llevar a cabo una gran cantidad de mediciones postirradiación, incluyendo quemado, densidad del combustible, crecimiento de óxido sobre la superficie externa de la vaina combustible y el contenido de hidrógeno producto de la captura durante el proceso de corrosión [7].

En la Tabla 5.2 se presentan las geometrías y condiciones operacionales generales para estos experimentos.

Tabla 5.2: Dimensiones, parámetros de irradiación y principales características de la serie de experimentos US-PWR [7]

ítem	parámetro	TSQ002/TSQ004	TSQ022/TSQ024
combustible	material	UO ₂	
	largo [mm]	9.906	
	diámetro [mm]	8.255	
	diámetro central [mm]	-	2.34
	tamaño de grano [μ m]	10	
	número de pastillas	384	
	enriquecimiento ²³⁵ U %	3.48	
	densidad [% TD]	95	
Vaina	material	Zircaloy-4	
	condición	tratamiento para aliviar tensiones	
	diámetro interno [mm]	8.433	
	diámetro externo [mm]	9.703	
parámetros de irradiación	máx. potencia lineal [W/cm]	260	
	flujo rápido [(n/cm ² s)/(W/cm)]	5.41×10 ¹¹	5.29×10 ¹¹
presión	presión interna de la barra [MPa]	2.62 (He)	
	presión del sistema [MPa]	15.51	

Por similitud con el material del experimento CONTACT, se usaron los mismos valores de trabajado en frío y de los factores de Kearns. La distribución de porosidad no se encontraba disponible, por lo que a partir del tamaño de grano del combustible, el código selecciona una distribución de las que tiene por *default*.

La información sobre la historia de potencia y los resultados postirradiación, se suministraron dividiendo en 25 zonas o sectores a las barras combustibles (aunque no todas las zonas presentaron medidas experimentales). En la Figura 5.7 a) se muestran las historias de potencia, promediada a lo largo de las barras combustibles, para los dos experimentos

analizados: TSQ002 y TSQ022. En los extremos de las barras la potencia fue de 0.6 veces la potencia promedio y en el centro de 1.1 veces, aproximadamente. Si bien no existe una diferencia importante entre las potencias promedios en ambos experimentos, la barra TSQ022 consistió en pastillas huecas. Este efecto puede observarse en la Figura 5.7 b), en donde se muestran las temperaturas centrales promedio obtenido por medio del cálculo (en el caso de pastilla huecas, las temperaturas se evalúan en la periferia del hueco). Aquí se observa que la temperatura es menor para TSQ022 que para TSQ002, con una diferencia entre 150 y 200 [K]. Lamentablemente, no se reportaron mediciones de temperatura para las pastillas en los informes, pero como veremos a continuación, el resto de los parámetros analizados presentan un buen acuerdo al comparar las simulaciones realizadas en este trabajo con los datos experimentales disponibles.

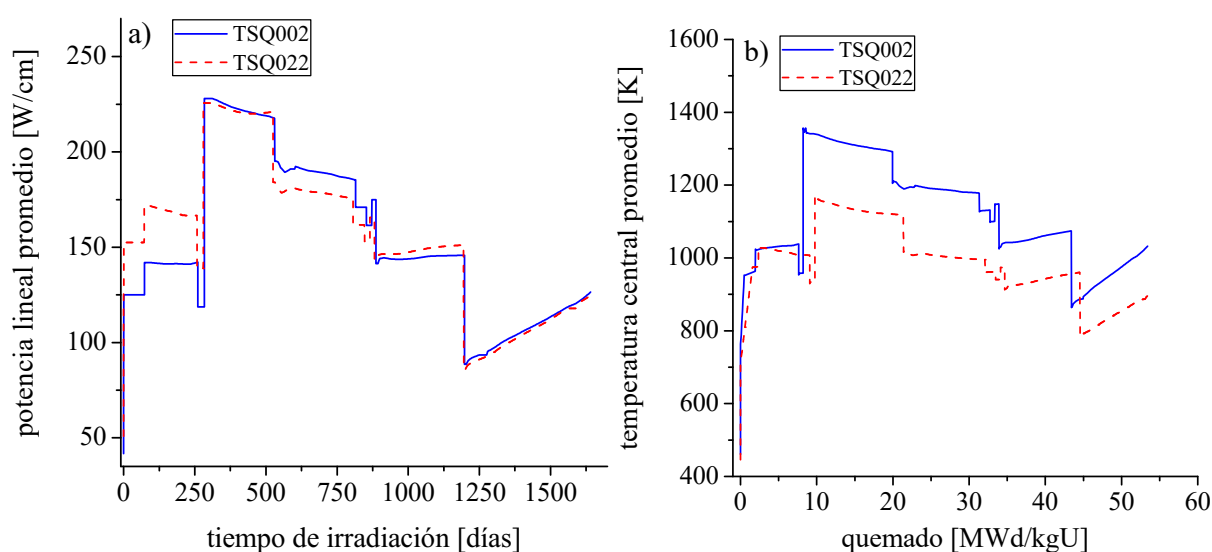


Figura 5.7: Potencia lineal promedio en función del tiempo y en b) evolución de temperatura central promedio de las barras TSQ002 y TSQ022 de los experimentos US-PWR 16x16 LTA.

En la Tabla 5.3 se presenta un resumen de los parámetros más relevantes medidos experimentalmente y los resultados obtenidos por medio del cálculo computacional. Se puede observar que existe un buen acuerdo general entre los valores obtenidos con el código y los medidos experimentalmente. En particular, el valor experimental de FGR indicado corresponde a una estimación en base a otras barras combustibles utilizadas. En los casos evaluados, existe una sobre-estimación de este parámetro, pero como se mencionó en el caso CONTACT, la liberación por debajo del 10% es difícil de predecir mediante código de combustible por la cantidad de incertidumbres en las variables empleadas. Sin embargo, siguiendo la sugerencia de evaluación de Pastore et al. [6], los bajos valores obtenidos con DIO-SCF son satisfactorios. En cuanto al *swelling* de las pastillas, se analizaron en dos sectores: 3 y 18, que corresponden a los sectores inferior y superior, respectivamente. Si los resultados obtenidos son consistentes con los medidos, una ligera subestimación de este parámetro en la zona inferior para el caso TSQ022, tiene como consecuencia una mayor deformación en la vaina. Esto se debe a que en una primera etapa se produce una reducción

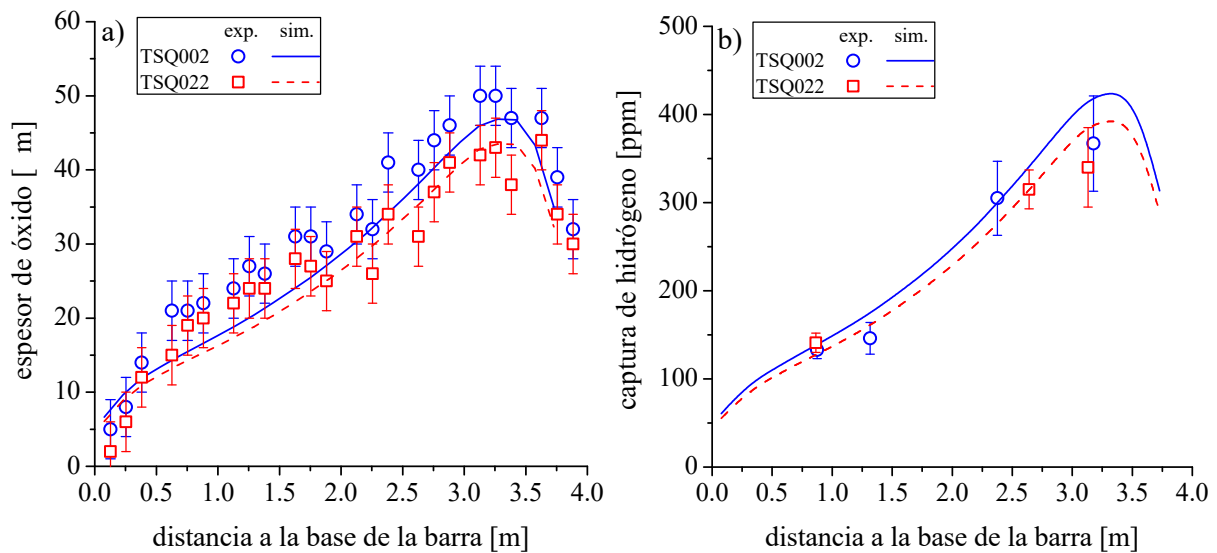


Figura 5.9: Perfil final del espesor de óxido (a) y de la captura de hidrógeno asociada (b) de las barras TSQ002 y TSQ022 de los experimentos US-PWR 16x16 LTA.

Como se explicó en la Sección 2.1, en general no se dispone de los datos de la temperatura externa en el *cladding*, por lo que en este trabajo se evalúa el comportamiento termo hidráulico a partir de variables relacionadas. En las Figuras 5.9 a) y b) se muestran los perfiles finales para el espesor del óxido de zirconio y la captura de hidrógeno. Los errores experimentales para las mediciones de óxido son ± 4 [μm] (nivel de confianza de 1σ), mientras que para la captura de hidrógeno oscilan entre 10 y 54 [ppm] [8]. Se observa un buen acuerdo entre los valores medidos y los calculados para ambos casos. Por un lado, se puede notar que los niveles alcanzados de espesor y de hidrógeno son menores en los casos de pastillas huecas, debido principalmente a una menor temperatura desarrollada, por lo que los fenómenos térmicamente activados se ven ralentizados. Este comportamiento también se evidencia experimentalmente. En a), se notan ciertas desviaciones en el cálculo, en especial entre 0.5 y 2.0 [m] desde la base de la barra. Esto fue analizado por Krasnorutsky y Slyeptson [8], quienes evaluaron sus códigos con modelos para incluir los productos de corrosión que son arrastrados por el refrigerante y depositados en la vaina (CRUD), alcanzando una leve mejora en dicha zona. A pesar de que se sugiere contemplar el CRUD sobre la vaina, esto no está indicado en las observaciones en el reporte técnico del experimento.

OSIRIS

Los experimentos bajo la sigla NEA-1622 IFPE/OSIRIS se componen de cuatro barras combustibles tipo PWR irradiadas en el reactor OSIRIS, destinadas al estudio de la oxidación y deformación de la vaina, la liberación de gases de fisión y el hinchamiento, entre otros. En este caso, se estudió el comportamiento de las barras designadas G07 y H09 que fueron irradiadas hasta alcanzar un quemado promedio de ~ 34.8 y ~ 46 [MWd/kgU], respectivamente.

En la Tabla 5.4 se indican las geometrías y condiciones operacionales generales para las barras G07 y H09.

Tabla 5.4: Dimensiones, parámetros de irradiación y principales características de la serie de experimentos OSIRIS [9, 10]

ítem	parámetro	G07	H09
combustible	material	UO ₂	
	largo [mm]	13.741	14.020
	diámetro [mm]	8.193	8.190
	tamaño de grano [μm]	10.20 - 12.40	8.83 - 10.02
	longitud activa [m]	~3.66	
	enriquecimiento ²³⁵ U %	4.488	3.249
	densidad [% TD]	95.45	95.30
Vaina	material	Zircaloy-4	
	diámetro interno [mm]	8.357	8.350
	diámetro externo [mm]	9.490	9.508
plenum	largo [cm]	16.10	16.41
parámetros de irradiación	pot. media temporal [W/cm]	210	190
	flujo rápido [(n/cm ² s)/(W/cm)]	3.8×10 ¹¹ – 4.8×10 ¹¹	
presión	presión interna de la barra [MPa]	2.5 (He)	3.1 (He)
	presión del sistema [MPa]	15.51	
refrigerante: agua	temperatura de ingreso [°C/K]	287.7/560.85	
	flujo másico [kg/cm ² s]	0.3606	

No se especificó el tratamiento termomecánico de la vaina de Zircaloy-4, por lo que se usaron los mismos parámetros que en los casos CONTACT y US-PWR.

Tabla 5.5: Parámetros de la distribución inicial de porosidad usados en las simulaciones

parámetro	G07	H09
tipo	bimodal	bimodal
r_g [μm]	5.65	4.65
r_{medv1} [μm]	1.0	1.0
r_{medv2} [μm]	10.0	10.0
porosidad 1 ^{er} pico [%]	4.0	3.2
porosidad 2 ^{do} pico [%]	0.55	1.5
porosidad total [%]	4.55	4.7

En cuanto a la porosidad inicial de las pastillas, cierta información estaba disponible, por lo que basándonos en esos datos se seleccionaron distribuciones bimodales. En la Tabla 5.5 se encuentran los parámetros utilizados y en 5.6 una comparación de la porosidad acumulada entre la distribución inicial simulada y la informada en los experimentos. En ambos casos, la porosidad acumulada se encuentra normalizada para que la porosidad máxima coincida con la porosidad obtenida a partir de la densidad en [% TD]. Esto se debe a que, generalmente, puede haber diferencias en la porosidad medida por medio de

conteo de poros con la medida geoméricamente o por inmersión en agua o alcohol [11]. En la comparación para la distribución inicial de porosidad de estos combustibles, se observa una sobreestimación para el rango de radios de poros entre 1 y 2.5 [μm] y en consecuencia una subestimación en el rango entre 2.5 y 5 [μm]. Este efecto ya fue mencionado en la sección 4.1.1 y ocurre en aquellos combustibles con distribuciones anchas de porosidad. Si bien los resultados obtenidos son razonables, nuevas distribuciones se deberían incorporar al modelo de densificación.

Tabla 5.6: Comparación de la distribución inicial de porosidad experimental y calculada para los experimentos OSIRIS

radio de poros [μm]	G07		H09	
	porosidad [%]			
	exp.	sim.	exp.	sim.
0 - 2	1.21	1.31	1.30	1.79
2 - 5	1.27	2.46	1.04	1.37
5 - 10	1.61	0.29	0.82	0.20
10 - 285	0.46	0.49	1.54	1.34

Para los experimentos analizados aquí, las barras fueron divididas axialmente en 18 sectores irregulares para indicar la historia de potencia y los resultados postirradiación. En la Figura 5.10 a) se muestran las historias de potencia, promediada a lo largo de las barras combustibles en función del tiempo de irradiación. En los extremos de las barras la potencia fue de 0.5 veces el valor promedio indicado y en las zonas centrales de 1.1 veces, aproximadamente. En la Figura 5.10 b) se muestran las temperaturas centrales para el sector más exigido de ambas barras, que corresponde al sector 8 (entre 1.2 y 1.8 [m] desde la base de la barra). Las temperaturas alcanzadas para la barra G07 son superiores que en H09 luego de los 7 [MWd/kgU], debido a que la potencia es mayor. Se puede observar, en particular, que para G07 entre 7 y 21 [MWd/kgU] de quemado, la temperatura desciende aun cuando la potencia se mantiene constante. Esto se produce como consecuencia de la reducción del *gap*, lo que aumenta la extracción del calor por el refrigerante (Ver Figura 5.11). A partir de los 21 [MWd/kgU], si bien el *gap* se cierra, la variación de volumen debido al *swelling* hace que se produzca un aumento en la porosidad y, por lo tanto, descienda la conductividad térmica de la pastilla combustible. El efecto de la reducción del *gap* para H09 es mucho menor, por lo que la variación de temperatura en relación a esto es menor. A partir de 10 [MWd/kgU] existe una tendencia a aumentar la temperatura central de la pastilla cuando la potencia se mantiene constante y se debe al aumento de porosidad por *swelling*.

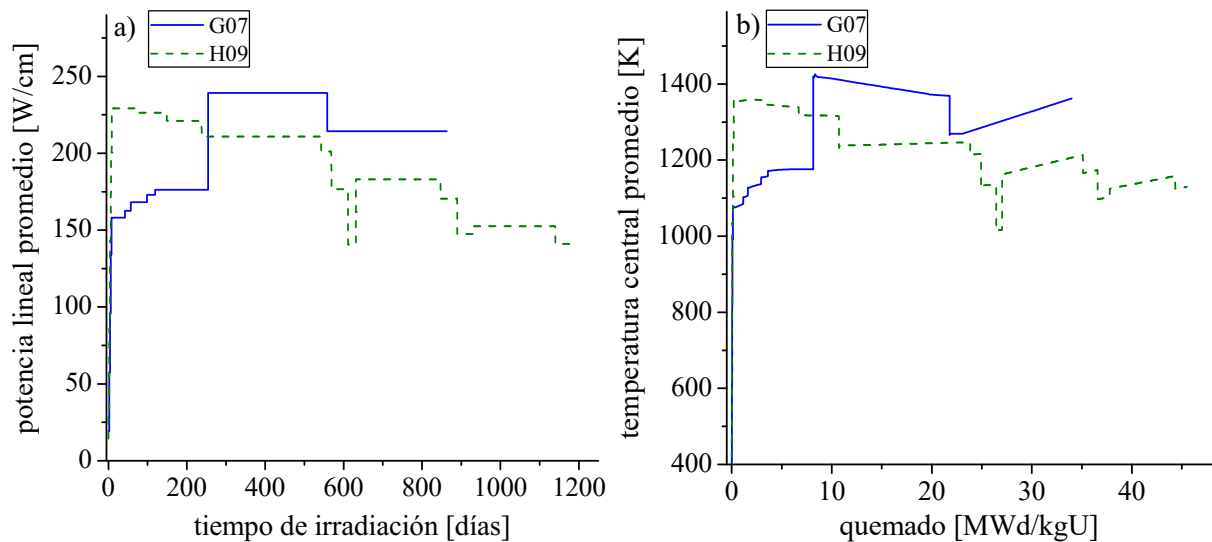


Figura 5.10: Potencia lineal promedio en función del tiempo (a) y evolución de temperatura central para el sector más exigido de las barras G07 y H09 de los experimentos OSIRIS [9, 10]

La evolución de la variación relativa de volumen porcentual de la pastilla y del *gap*, para el sector más exigido de ambas barras, se encuentran en la Figura 5.11. En primer lugar, se muestra una abrupta reducción del volumen de la pastilla para G07 causado por la densificación y luego rápidamente crece como consecuencia del hinchamiento. En este sentido, el *gap* desciende rápidamente en unos primeros instantes debido a la dilatación térmica del conjunto pastilla-vaina, pero luego a causa de la densificación crece levemente para posteriormente decrecer por aumento del volumen de la pastilla. Por otro lado, para

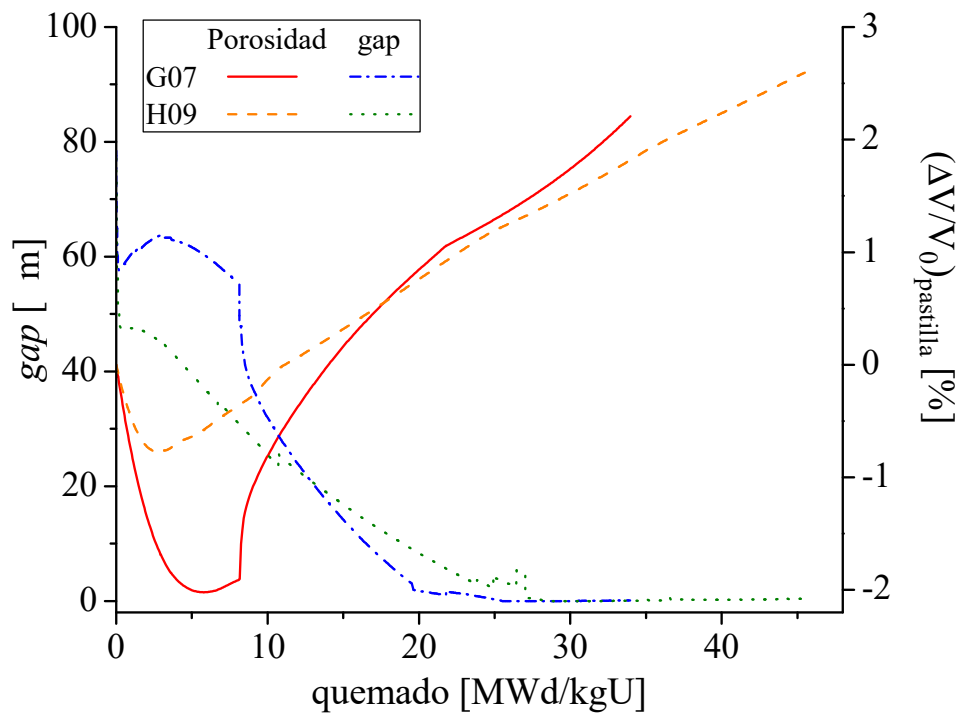


Figura 5.11: Evolución del *gap* (a) y de la variación de volumen de una pastilla del sector más exigido para las barras G07 y H09

H09, la densificación es menor y no logra superar al *creep* por irradiación para que el *gap* aumente como en el caso anterior, si no que este desciende con menor velocidad hasta que luego se hace más pronunciado por el hinchamiento.

Tabla 5.7: Selección de los resultados obtenidos para los experimentos OSIRIS [9, 10]

parámetro	G07		H09		
	exp.	sim.	exp.	sim.	
Quemado promedio [MWd/kgU]	34.8	36.6	46.0	45.3	
FGR [%]	0.49	6.02	0.8	3.63	
Espesor de óxido máx. [μm]	30.9	28.9	59.8	58.8	
Captura de H máx. [ppm]	362	310	471	582	
swelling [%]	sector 6	-	2.98	2.2 ± 0.4	2.82
	sector 8	2.2	2.21	-	-
	sector 10	-	1.95	2.4	2.42
	sector 12	-	1.77	2.5 ± 0.2	2.56

En la Tabla 5.7 se presentan algunas comparaciones para diferentes parámetros obtenidos en los experimentos OSIRIS. En general, los resultados obtenidos con el código presentan buen acuerdo al comparar con los datos experimentales. Al igual que en los casos analizados anteriormente, existe una sobreestimación en los valores de FGR para ambas barras. Además, para el caso H09 el máximo valor del contenido de hidrógeno calculado es 24 % mayor que el medido, aunque no se reportaron desviaciones estándar para estos valores. Para las medidas de *swelling* disponible, los valores obtenidos son satisfactorios considerando las diferencias señaladas previamente en cuanto a la distribución inicial de porosidad de fabricación.

El perfil del espesor del óxido para las barras estudiadas se indican en la Figura 5.12. Existe un buen acuerdo general entre los cálculos y las medidas experimentales. Las mayores desviaciones ocurren en la zona inferior de la barra H09 en donde los datos medidos son ligeramente superiores a los calculados, mientras que ocurre una ligera subestimación en el cálculo en la zona inferior para la barra G07. Las fuertes depresiones en la medida del óxido que ocurre de forma oscilatoria en los datos experimentales ocurren en los sectores cortos de la barra. Dichos sectores corresponden a los espaciadores de las barras, por lo que en esas zonas la potencia se ve fuertemente reducida. DIONISIO en sí puede considerar sectores de diferentes longitudes, mientras que SubChanFlow solo considera zonas axiales regularmente divididas. Esto hace que parte de esta información se pierda en las interpolaciones lineales que se realizan en el código, a menos que las longitudes de los sectores tratados por el módulo termo hidráulico sean iguales al mínimo sector en DIONISIO aumentando considerablemente los nodos requeridos en este caso en particular. Sin embargo, a pesar de estas diferencias se logra un buen comportamiento del acople.

En las Figuras 5.13 a) y b) se presentan las variaciones relativas del diámetro exterior de la vaina con el óxido desarrollado incluido y aplicando una corrección para no considerarlo.

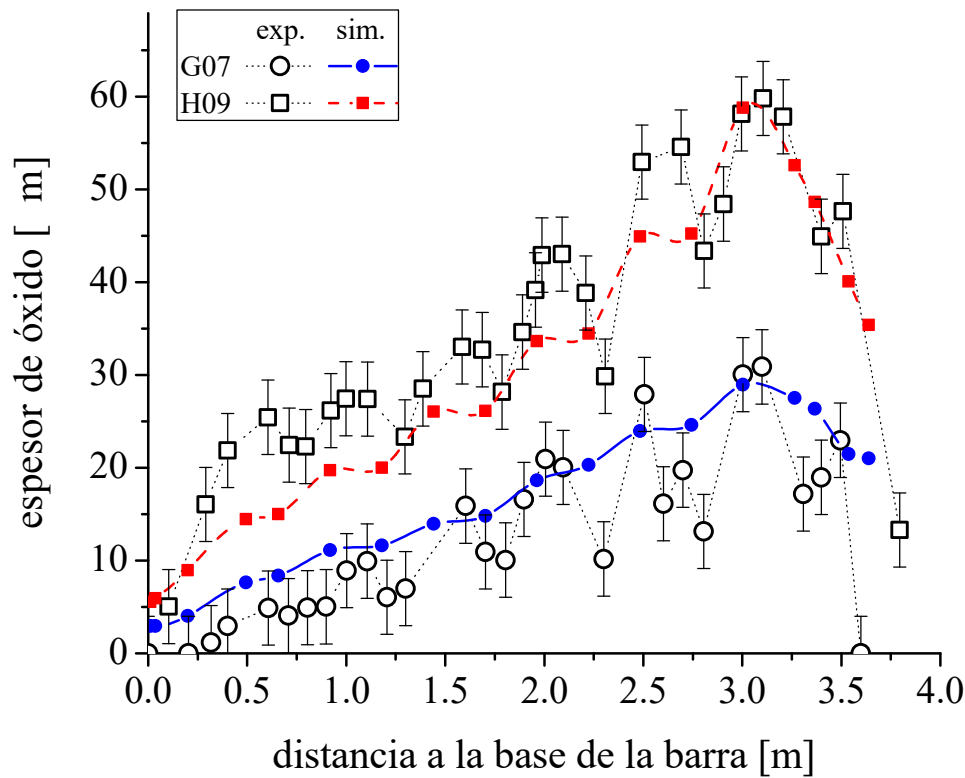


Figura 5.12: Perfil del espesor del óxido para las barras G07 y H09. Las barras de error corresponden a ± 4 $[\mu\text{m}]$, tomando como referencia las medidas del experimento OSIRIS [9, 10]

En ambas barras, se puede observar un muy buen acuerdo, a pesar de las diferencias que se observan, en especial en la barra G07.

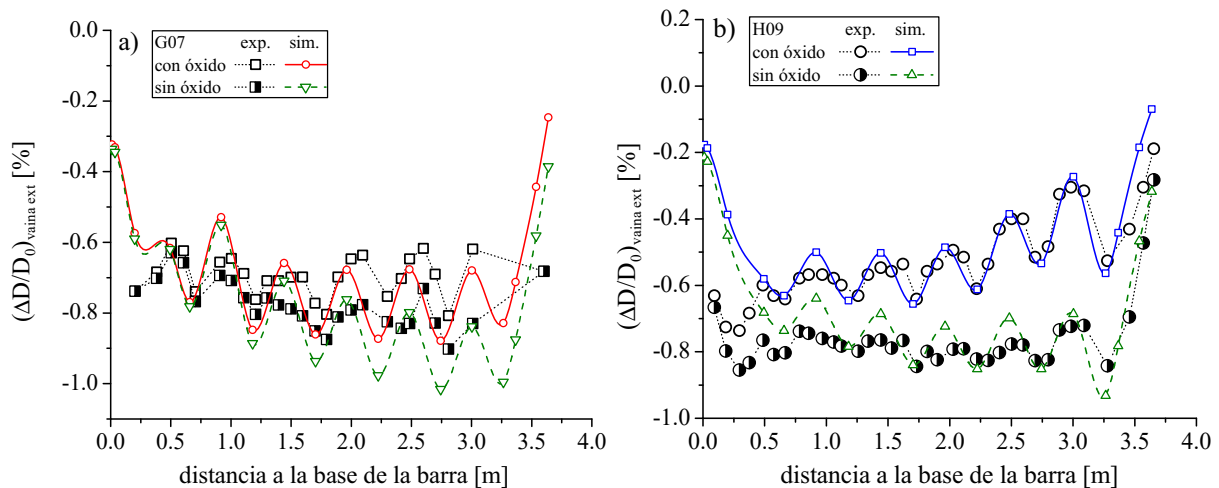


Figura 5.13: Perfil de la variación relativa del diámetro exterior de las barras G07 y H09 de los experimentos OSIRIS [9, 10]. Se indican las variaciones con y sin capa de óxido.

Como pudo verse en esta sección, los resultados obtenidos para los diferentes parámetros muestran un buen acuerdo con los datos experimentales, indicando un óptimo comportamiento de la nueva versión del código.

Referencias

- [1] M. Bruet, J. Dodelier, P. Melin y M. L. Pointund. “CONTACT 1 and 2 experiments: Behaviour of PWR fuel rod up to 15000 MWd/tU”. *IAEA Specialists’ Meeting on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling*. Blackpool, UK, 1980.
- [2] M. Charles, J. J. Aberssin, D. Baron, M. Bruet y P. Melin. “Utilization of CONTACT Experiments to Improve the Fission Gas Release Knowledge in PWR Fuel Rods”. *IAEA Specialists’ Meeting on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling*. Preston, UK, 1982.
- [3] NEA-1536/02-IFPE/TRIBULATION. *Fuel rod behaviour at high burnup*. Inf. téc. 2002.
- [4] R. W. L. Fong. “Anisotropy factors from texture and mechanical strain in Zircaloy-4 fuel sheaths”. *Journal of Nuclear Materials* 440 (2013), págs. 288-297. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.04.089. URL: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.04.089>.
- [5] P. M. E. Cunningham, E. R. Bradley, J. L. Daniel, N. C. Davis, D. D. Lanning y R. E. Williford. *Precharacterization report for Instrumented Fuel Assembly (IFA)-527*. Inf. téc. 1981.
- [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.
- [7] W. F. Lyon y J. Turnbull. *IFPE/US-PWR-16 X 16 Lead Test Assembly Extended Burnup Demonstration Program*. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2005.
- [8] V. Krasnorutskyy y O. Slyeptson. *Fuel Rod Performance Evaluation of CE 16x16 LTA Operated at Steady State using TRANSURANUS and PAD Codes*. Inf. téc. 2009.
- [9] M. Menard. *Rapport d’Assurance Qualite Crayon FF06E2BV/G07/1067*. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 1998.
- [10] M. Menard. *Rapport d’Assurance Qualite Crayon FF0EFELX/H09/5007*. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 1998.
- [11] M. E. Cazado. “Evolución microestructural en pastillas combustibles bajo irradiación. Master’s Thesis ITS/TM 206/19”. Master Thesis. Universidad Nacional de San Martin, 2019.

6. Conclusiones

En este trabajo se desarrollaron modelos de pastillas y vainas combustibles y se amplió la descripción termohidráulica para obtener un código que permita evaluar de forma integral barras combustibles sometidas a irradiación.

En primer lugar, se presentó el acople entre el código de combustibles DIONISIO (CNEA) y el código termohidráulico SubChanFlow (KIT-Alemania) para la simulación de barras combustibles en reactores de potencia. Durante este desarrollo se evaluaron las capacidades de ambos códigos y se modificó la subrutina termohidráulica de DIONISIO, para lo cual se introdujeron importantes cambios tanto en el cuerpo del código maestro como de SubChanFlow. Este acople permite a DIONISIO utilizar una gran librería de modelos para la transferencia térmica en fase simple y doble para evaluar la evolución del fluido en un canal refrigerante y su interacción con la estructura. La nueva herramienta DIONISIO-SubChanFlow logró temperaturas de vaina ligeramente menores con respecto a DIONISIO (menores a 10 [K]), que demostraron tener un impacto significativo en las variables relacionadas, como ser el crecimiento del óxido de zirconio externo a la vaina y la captura de hidrógeno relacionado al proceso de corrosión. Esta mejora se pudo observar en las simulaciones de barras combustibles al integrar todos los modelos del código.

Basado en la metodología de elementos finitos de DIONISIO, se ha desarrollado un modelo termohidráulico para evaluar el comportamiento del refrigerante entre placas combustibles para reactores de investigación. Para esto, se han programado las ecuaciones de Navier-Stokes utilizando un método de estabilización para la ecuación de incompresibilidad. Además, se incorporó un modelo de turbulencia simple. Si bien los resultados de este modelo se han verificado frente a un software validado, alcanzando muy buenos resultados generales, aún es necesario incorporar la transferencia térmica entre el refrigerante y las placas para poder simular de forma integral el combustible en reactores de investigación.

En cuanto a las vainas combustibles, se realizó el desarrollo, la programación e inclusión de un nuevo modelo de crecimiento por irradiación para componentes de reactores nucleares de aleaciones de zirconio en el código DIONISIO. La evaluación del modelo actuando de forma independiente al código ha mostrado un buen comportamiento al predecir la evolución de la deformación de vainas de Zircaloy-2 y Zircaloy-4, tanto en estado recocido previo como con una historia de deformación plástica en frío. Además, se ampliaron los parámetros utilizados para simular componentes de Zr-Nb. La versión del modelo incluida en el código, que debe funcionar en forma acoplada al resto, ha demostrado una mejora significativa en la simulación de la deformación axial al comparar con una amplia biblioteca de datos experimentales relacionados. Este modelo permitió incluir la evaluación de la deformación tanto axial, como radial y transversal, a través de la incorporación de los factores de textura de Kearns.

Con respecto a las pastillas combustibles de UO_2 , se implementó un modelo de densificación de pastillas bajo condiciones de irradiación en el código DIONISIO. Este modelo se basa en la difusión de los defectos puntuales, vacancias e intersticiales, a través de la red cristalina y su interacción con los defectos microestructurales, en especial con los poros de fabricación, bordes de grano y dislocaciones. El modelo se encuentra acoplado al gran conjunto de fenómenos termomecánicos que posee DIONISIO y ha mostrado un óptimo comportamiento al evaluar sus resultados frente a los datos experimentales disponibles en la literatura. En relación con este modelo, se ha desarrollado un nuevo módulo dentro de DIONISIO denominado WIRR –Without IRRadiation (anteriormente FEM). Este módulo permite evaluar el comportamiento de pastillas combustibles (extendido en estos momentos a vainas) sometidas a condiciones sin irradiación. En particular, en este trabajo, se lo utilizó para evaluar los ensayos de re-sinterizados que se ejecutan convencionalmente a las pastillas combustibles nucleares para evaluar su potencial cambio dimensional como producto de la reducción de los poros iniciales que se obtienen por fabricación. Como la porosidad y las características de su distribución constituyen parámetros fundamentales para una correcta descripción de un combustible bajo irradiación, y muchas veces estos datos no están disponibles, se utiliza este módulo para seleccionar una distribución, de un abanico de posibilidades, que cumplan con los datos de re-sinterizado que sí suelen ser informados. Los resultados que se obtuvieron con este módulo permitieron ampliar las posibilidades del modelo de densificación y las capacidades generales del código.

Además, se ha desarrollado e implementado dentro de DIONISIO un nuevo modelo para determinar el cambio dimensional producto de la acumulación de gases de fisión, tanto intragranulares como intergranulares. Así mismo, se ha incorporado un nuevo modelo para calcular la liberación de gases de fisión acoplado al modelo de hinchamiento y a un modelo de microfisuras de la pastilla combustible cuando se la somete a rampas de potencia. Tanto en su versión independiente como dentro de DIONISIO, el modelo ha demostrado buenos resultados en la simulación, tanto del tamaño de las burbujas nucleadas en el combustible, su concentración, como del hinchamiento propiamente dicho. Este modelo ha sido validado con datos experimentales de la literatura desarrollados exclusivamente para este fin y contra experimentos de mayor complejidad en donde los fenómenos se encuentran superpuestos.

Finalmente, se realizaron comparaciones integrales con experimentos nucleares de alta complejidad en donde se evaluó el comportamiento de la nueva herramienta DIONISIO-SubChanFlow. En general, los resultados obtenidos son satisfactorios, mostrando una mejora significativa al comparar con la versión anterior del código y con los datos experimentales disponibles.

Trabajos a futuro

- En el modelo termohidráulico para placas combustibles, resta incorporar las ecuaciones de transferencia térmica entre el refrigerante y las placas para poder calcular el calentamiento del refrigerante a la salida del elemento combustible y poder determinar la evolución de los fenómenos termomecánicos que sufren las placas.
- En particular, se ha observado que para valores de liberación de gases de fisión menores al 10%, existe una sobre-estimación por parte del código, debido a la gran sensibilidad que existe entre los parámetros utilizados. Un estudio profundo de sensibilidad se sugiere como trabajo a futuro para determinar las incertezas en el cálculo.
- Ciertas desviaciones entre los cálculos y las medidas experimentales para el espesor de la capa de óxido externa sugieren que nuevos modelos para evaluar este efecto necesitan ser desarrollados. Además, determinar la deposición de productos de corrosión sobre la vaina puede tener efectos importantes, ya que estos deterioran la extracción del calor, acelerando los diferentes fenómenos estudiados en este trabajo.
- Para finalizar, si bien los efectos de los modelos de densificación e hinchamiento se encuentran acoplados dentro del código, los fenómenos difusivos se determinan de manera independiente entre ellos para mayor simplicidad. En este sentido, se propone estudiar el efecto que tienen los gases de fisión que migran hacia los poros de fabricación y considerar en los sumideros los efectos conjuntos de los poros y las burbujas, así como también determinar de manera integral la evolución de defectos puntuales considerando tanto poros como burbujas.

A. Estimación de la bondad de un ajuste

Cuando se analiza la aplicación de modelos para predecir o simular una determinada variable es necesario establecer algún criterio que permita evaluar la bondad del modelo o reproducibilidad del mismo de manera cuantitativa, más allá del análisis cualitativo que se pueda extraer de observar un gráfico de simulación vs. experimentos.

La concordancia perfecta se consigue cuando todos los pares de puntos (**exp,sim**) caen sobre una recta a 45° (pendiente $m = 1$) y que presenta ordenada al origen igual a 0. Existen diferentes métodos para determinar la reproducibilidad de un set de datos, sin embargo, los métodos comúnmente usados presentan ciertas desventajas que deben tenerse en cuenta.

Uno de ellos consiste en realizar un test de normalidad a los residuos, es decir, a la diferencia entre los valores experimentales y calculados. Entre los métodos más poderosos se encuentra el test de Shapiro-Wilk [1]. La hipótesis nula de este test es: “los datos (en este caso los residuos) corresponden a una distribución normal” y su bondad se determina con el p-valor. El p-valor (*p-value*) es la probabilidad de que el estadístico de un test, en este caso la media, tome un valor tanto o más extremo que el observado. En otras palabras, el p-valor es el riesgo que se corre de rechazar la hipótesis nula por la alternativa. Esto quiere decir que, si el p-valor es muy bajo, menor que un determinado nivel de significancia (α), se puede rechazar la hipótesis nula, diciendo que los datos no corresponden a una distribución normal, sin correr un riesgo importante de cometer un error tipo I [2]. En cambio, si $p\text{-valor} > \alpha$, no se tiene información suficiente para rechazar la hipótesis nula. Sin embargo, este test no proporciona conclusiones sobre el valor de la media, que en estos casos al evaluar los residuos, se desea evaluar si la media es igual a 0. En la Figura A.1 a), se puede ver cómo para los dos conjuntos de datos indicados $p\text{-valor} > \alpha = 0.05$, pero no existe una correcta reproducibilidad. En particular la denominada “muestra 1” presenta una media de los residuos igual a cero, lo que muestra que este método no permite un análisis completo para determinar la bondad de un ajuste. Por otro lado, el coeficiente de correlación de Pearson (r) mide el ajuste lineal de los datos, pero falla al detectar una desviación de la línea a 45° . Esto se puede observar en la Figura A.1 b), en donde el ajuste lineal es perfecto, la ordenada al origen es cero, pero la pendiente dista de ser una recta a 45° . Para proporcionar un índice de reproducibilidad se utiliza el coeficiente de correlación de concordancia propuesto por Lin [3], que mide la variación que tiene un conjunto de datos con respecto a una línea de 45° que pasa por el origen de coordenadas.

Si se supone un conjunto de pares de datos (E_{i1}, S_{i2}) con $i = 1, 2, \dots, n$, en donde E_i son los valores medidos experimentalmente, M_i los valores obtenidos por las simulaciones y n es el tamaño de la muestra, tal que μ_1 y μ_2 sean las medias de los valores medidos y calculados, respectivamente, el coeficiente de correlación de concordancia ρ_C se define

como:

$$\rho_C = \frac{2\sigma_{12}}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2 + (\mu_1 - \mu_2)^2} \quad (\text{A.1})$$

en donde σ_{12} , σ_1^2 y σ_2^2 son los elementos de la matriz de covarianza.

Por la definición, este coeficiente se encuentra entre -1 y 1. La concordancia perfecta se consigue con $\rho_C = 1$ y cualquier desviación se representa con $\rho_C < 1$.

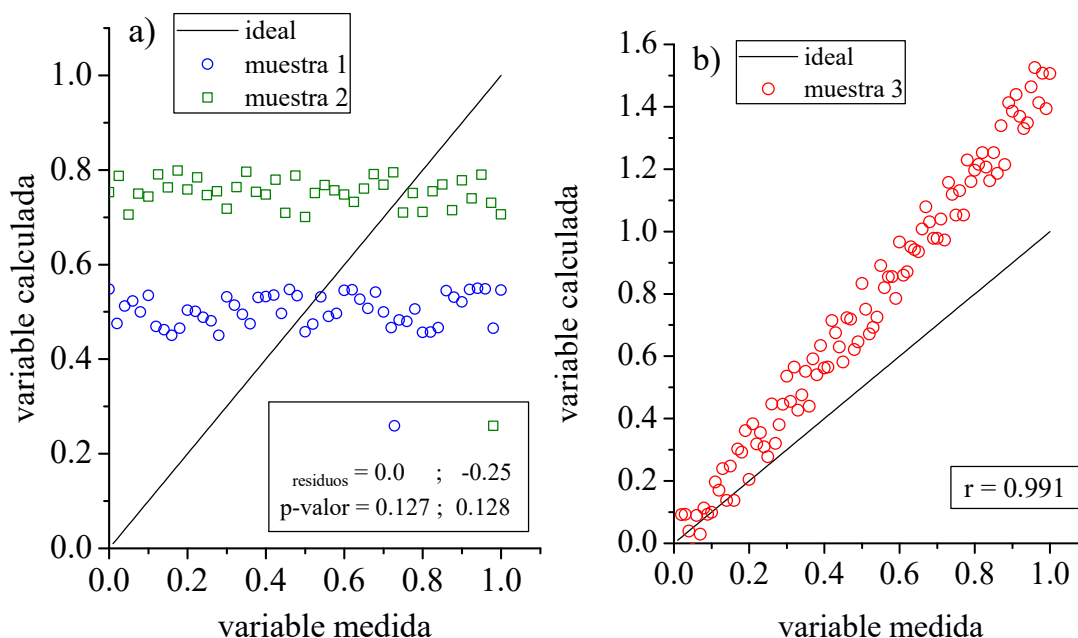


Figura A.1: Ejemplos en los que el test de normalidad de Shapiro-Wilk para los residuos, y el coeficiente de correlación de Pearson fallan

El criterio para evaluar si la reproducibilidad es buena o no, depende los autores consultados. De acuerdo son McBride, G. B. [4], un criterio válido se puede encontrar la Tabla A.1:

Tabla A.1: Grado de concordancia según el valor del coeficientes de correlación de concordancia de Lin

grado de concordancia	ρ_C
casi perfecta	> 0.99
sustancial	0.95 - 0.99
moderada	0.90 - 0.95
pobre	< 0.90

No obstante, los valores señalados en la Tabla A.1 resultan totalmente arbitrarios y están destinados específicamente a medidas de concentraciones de sustancias químicas convencionales en un laboratorio. La gran cantidad de incertidumbres en las medidas experimentales nucleares debido al proceso complejo de obtención de estos datos hace que estos valores no puedan emplearse de manera práctica en este tipo de estudio. Tomando en base otros criterios, se considera que la concordancia es buena cuando $\rho_C \geq 0.80$, e incluso,

cuando el objetivo del estudio incluya analizar qué modelo arroja mejores resultados, una simple comparación entre los ρ_C resultará suficiente.

Referencias

- [1] S. S. Shapiro y M. B. Wilk. “An Analysis of Variance Test for Normality (Complete Samples)”. *Biometrics* 52.3-4 (1965), págs. 591-611. DOI: 10.2307/2333709.
- [2] G. C. Canavos. *Probabilidad y Estadística: Aplicaciones y métodos*. McGraw-Hill, 1988.
- [3] L. Lin. “A Concordance Correlation Coefficient to Evaluate Reproducibility”. *Biometrics* 45.1 (1989), págs. 255-268. DOI: 10.2307/2532051.
- [4] McBride, G. B. *A proposal for Strength-of-Agreement Criteria for Lin’s Concordance Correlation Coefficient*. Prepared for Ministry of Health. 2005.