

MODELADO DE UNA BARRA COMBUSTIBLE EN CONDICIONES DE ALMACENAMIENTO POST-IRRADIACIÓN EN PILETA

NUCLEAR FUEL BEHAVIOR MODELIZATION IN POST-IRRADIATED POOL STORAGE ENVIRONMENT

Gonzalo Bergás^c, Ezequiel Goldberg^a y Alejandro Soba^{a,b}

^a*Sección Códigos y Modelos, Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear, CAC, CNEA, Villa Maipú, Argentina*

^b*CONICET*

^c*Facultad de Ingeniería, UBA, CABA, Argentina*

Palabras clave: Código combustible nuclear, DIONISIO, almacenamiento en pileta, modelado numérico.

Resumen. La vida útil de un elemento combustible tiene una duración relativamente corta si se compara con el tiempo que el mismo permanecerá en almacenamiento, ya sea en pileta los primeros años, o en seco, durante periodos prolongados. En este proceso el combustible debe pasar por diferentes sollicitaciones termomecánicas y termoquímicas que pueden producir importantes alteraciones que afectan la integridad del mismo. El código DIONISIO predice el comportamiento del combustible nuclear bajo irradiación, en condiciones de operación normal o en condiciones de accidente. Se inició el desarrollo de un nuevo módulo con el objetivo de extender el rango de predictibilidad al período que involucra el depósito en pileta del combustible gastado. Para ello se hace necesario estudiar las características termomecánicas y termoquímicas de una barra combustible almacenada, contemplando la historia de irradiación previa. Esto implica ampliar el rango de validez de los modelos incluidos en el código a las condiciones térmicas y atmosféricas de almacenamiento, así como desarrollar nuevos modelos que describan el crecimiento de óxido, el creep y captura de hidrógeno. En este trabajo se presenta el estado de avance de este desarrollo.

Keywords: Fuel Nuclear code, DIONISIO, pool storage, numerical models.

Abstract. The useful life of a fuel element has a relatively short duration in comparison with the time it will remain in storage, either in a pool for the first few years, or dry, for long periods. In this process, the fuel must go through different thermo-mechanical and thermochemical stresses that can produce important alterations that affect its integrity. The DIONISIO code predicts the behavior of nuclear fuel under normal operating conditions or under accident conditions. The development of a new module began with the objective of extending the range of predictability to the period that involves the tank deposit of spent fuel. For this, it is necessary to study the thermo-mechanical and thermochemical characteristics of a stored fuel rod, considering the history of previous irradiation. This implies expanding the validity range of the models included in the code to the thermal and atmospheric storage conditions, as well as developing new models that describe the growth of oxide, creep and hydrogen capture. In this work the state of progress of this development is presented.

1. INTRODUCCIÓN

Un elemento combustible después de su ciclo de irradiación permanecerá almacenado en pileta los primeros años, para pasar probablemente a un repositorio en seco, durante un periodo que puede llegar a alcanzar décadas. En todo este proceso de post irradiación, el combustible debe pasar por diferentes sollicitaciones termo-mecánicas y termoquímicas, que pueden afectar su estabilidad. Por un lado, desde el punto de vista del combustible, se debe garantizar la extracción del calor residual generado por decaimiento radiactivo, así como tener en cuenta la difusión al volumen libre de diferentes productos de fisión generados durante la irradiación, algunos de los cuales son altamente corrosivos. Asimismo, la presión y la temperatura internas de cada barra combustible tendrán una evolución en función del tiempo que debe ser contemplada. Por otro lado, desde el punto de vista de la vaina, la corrosión interna, dada por los productos de fisión liberados al volumen libre, se suma a la externa, dada por el tipo y forma de refrigerar el combustible gastado (Johnson jr, 1977; IAEA, 1982). Esta puede ser tanto líquida, durante la permanencia en pileta, como gaseosa, si el almacenamiento es en seco mediante aire.

Cada uno de los procesos mencionados anteriormente, si bien introducen cambios de pequeñas magnitudes en el corto plazo, producen importantes alteraciones si consideramos décadas de almacenamiento, variaciones que pueden afectar la integridad de dichos combustibles y la seguridad de las instalaciones de contención (Kaminski, 2005; Lavigne et al., 2012). Realizar experimentos sobre este tipo de situaciones no solo es costoso, sino que muchas veces resulta inviable, ya que los tiempos involucrados en los procesos son extremadamente largos y dependientes de factores en muchos casos aleatorios, que requieren una estadística de muestreo adecuada (Lavigne et al., 2012; Peehs y Fleisch, 1985). Esta situación convierte a las herramientas de simulación en atractivos medios para producir conocimiento predictivo en forma económica. Contar con un software de predicción de comportamiento post irradiación que contemple todas las situaciones involucradas en una historia completa de almacenamiento, teniendo en cuenta la cantidad de fenómenos involucrados e interdependientes que evolucionan durante cientos de años, puede resultar de interés para todo organismo involucrado en la conservación y seguridad de los elementos combustibles gastados (Peehs y Fleisch, 1985; Leenaers et al., 2003).

La sección Códigos y Modelos de la Gerencia del Ciclo Combustible Nuclear ha desarrollado el código DIONISIO (Lemes et al., 2019), actualmente en su versión 3.0. Dicho código predice el comportamiento del combustible nuclear bajo irradiación, en condiciones de operación normal del reactor o en condiciones de accidente tipo LOCA. El código permite estudiar combustibles de reactores de potencia del tipo PWR, BWR, PHWR y SMR o de investigación, del tipo PLACA. El rango de trabajo y los modelos que contiene, han permitido simular el comportamiento de combustibles de todos los reactores del país, colaborando en el diseño de algunos de ellos (Williamson et al. (2012)).

Extender el rango de predictibilidad del código DIONISIO al período que involucra el depósito en pileta del combustible gastado resulta así una forma de completar una herramienta virtual para analizar la vida completa de un EECC. Las menores temperaturas presentes al período de almacenamiento hacen necesario verificar si estos modelos pueden ser extrapolados a dicho periodo. En este trabajo, en primer lugar se muestra el estudio realizado sobre la aplicabilidad de los diferentes parámetros a las temperaturas de almacenamiento, y luego se describen los modelos de calor de decaimiento, termohidráulico, crecimiento de óxido, captura de hidrógeno, y creep, que serán los que se implementarán en el código para simular la etapa de almacenamiento.

2. PARÁMETROS TÉRMICOS Y MECÁNICOS

2.1. Conductividad térmica

El modelo de conductividad térmica de la pastilla de UO_2 que utiliza DIONISIO (Lemes et al., 2019), válido para la etapa de operación (in-pile), es función de la temperatura, del quemado, la porosidad, y la fracción en peso de Gadolinio en el combustible (Eq. (1), Eq. (2)). Por su parte, Hagrman y Reymann (1993), y Geelhood y Luscher (2014) reportan expresiones válidas en el rango de temperatura de almacenamiento. Se han comparado estos modelos entre sí verificando la aplicabilidad del modelo de DIONISIO (Lemes et al., 2019) para la etapa de almacenamiento.

$$H_{Bu} = 0,0187Bu + \frac{3,8 (1 - 0,9e^{-0,04 Bu}) Bu^{0,28}}{1,0 + 396e^{\left(\frac{-6380}{T}\right)}} \quad (1)$$

$$K_f = (1 - POR^{0,666}) \left[\frac{1}{A + BT + H_{Bu} + 97,67 \text{ gad}} + \frac{C}{T^2} e^{\frac{-W}{AKT}} \right] \quad (2)$$

Donde K_f es la conductividad térmica [W/cm.K]; Bu el quemado [Gwd/MTU], T la temperatura [K]; POR representa la fracción de poros; d la densidad del combustible, A, B, C, W y AK son constantes.

Para la vaina, el modelo actualmente implementado en DIONISIO es el desarrollado por Hagrman y Reymann (1993) y cubre el rango de temperaturas de almacenamiento (Eq. (3)).

$$K_v = 7,51E - 2 + (2,09E - 4)T - (1,45E - 7)T^2 + (7,67E - 11)T^3 \quad (3)$$

La conductividad térmica del gas de llenado depende de la cantidad de gases que lo componen. En un combustible con un cierto grado de quemado, el volumen estará ocupado por helio o argón en casos de test y un porcentaje creciente con la irradiación de gases liberados al volumen libre, especialmente Xenón y Kriptón. El modelo implementado en DIONISIO es el reportado en Hagrman y Reymann (1993), y calcula la conductancia en función de la conductividad térmica de cada uno de los gases, la presión y el espesor del gap. El modelo es válido para temperaturas $T > 300K$, lo que permite su aplicabilidad en el periodo de almacenamiento (Eq. (4), Eq. (5) y Eq. (6)).

$$h = \sum_{i=1}^n \left(\frac{k_i x_i}{x_i + \sum_{j=i \neq 1}^n \psi_{ij} x_j} \right) \left(\frac{1}{t + \frac{\sqrt{M_i T}}{18} \left(\frac{\gamma_i - 1}{\gamma_i + 1} \right) \left(\frac{1}{a_i p} \right) \left(\frac{k_i}{x + \sum_{j=1}^n \delta_{ij} \psi_{ij} x_j} \right)} \right) \quad (4)$$

$$\psi_{ij} = \varphi_{ij} \left(1 + 2,41 \frac{(M_i - M_j)(M_i - 0,142M_j)}{(M_i + M_j)^2} \right) \quad (5)$$

$$\varphi_{ij} = \frac{\left[1 + \left(\frac{k_i}{k_j} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{M_i}{M_j} \right)^{\frac{1}{4}} \right]^2}{2^{\frac{2}{3}} \left(1 + \frac{M_i}{M_j} \right)^{\frac{1}{2}}} \quad (6)$$

Donde h es la conductancia de la mezcla de gases del gap (W/m².K); δ_{ij} es la delta de Kroencker; M_i es el peso molecular del componente i [K]; x_i es la fracción molar del componente i [adim]; k_i es la conductividad térmica del componente i [W/m.K]; γ_i la relación de calor específico a presión y volumen constante para el elemento i [adim]; t es el espesor del gap [m]; A, B, a_i son constantes adimensionales.

El modelo para la conductividad térmica de la capa de óxido que cubre la superficie externa de la vaina, implementado actualmente en DIONISIO, presenta una leve variación con la temperatura. Por su parte, [Hagrman y Reymann \(1993\)](#) presenta un valor constante en un amplio rango de temperaturas, que parte de $T=300K$, cubriendo el rango de temperaturas de almacenamiento. Comparando ambos modelos, se observa una variación menor al 5 %, por lo que se asume que no se comete un error considerable al utilizar el modelo de DIONISIO en etapa de almacenamiento (Eq. (7)).

$$cte_{ox} = -\frac{4}{(D_{Oxmax})D_{ox}} - 0,5D_{Oxmax} \quad (7)$$

$$K_{Ox} = 0,5((K_{Oxmax} + K_{Oxmin}) - (K_{Oxmax} - K_{Oxmin}) * \tanh(cte_{ox})) \quad (8)$$

Donde K_{Ox} es la conductividad térmica de la capa de óxido [W/cm.K]; D_{Ox} el espesor de la capa de óxido [cm]; D_{Oxmax} es 70; K_{Oxmax} es 0.018 y K_{Oxmin} es 0.012.

2.2. Capacidad calorífica

La capacidad calorífica del UO_2 sólido es función de la temperatura y la relación oxígeno-metal en la pastilla. Estos parámetros son fundamentales para los cálculos de temperatura en problemas dependientes del tiempo, como es el caso de LOCA (Loss of Coolant Accident), o el periodo de almacenamiento en piletta (con especial importancia en la etapa de transición). Se comparó el modelo implementado en DIONISIO con el descrito en [Hagrman y Reymann \(1993\)](#), que es válido para el rango $300K \leq T < 4000K$. Se encontró que para las temperaturas mas bajas, la diferencia entre ambos modelos era menor al 3 %, lo que permite asumir la aplicabilidad del modelo de DIONISIO ([Lemes et al., 2019](#)) para periodo de almacenamiento (Eq. (9)).

$$cp = \frac{c_1 \theta^2 e^{\frac{\theta}{T}}}{T^2 [e^{\frac{\theta}{T}} - 1]^2} + \frac{2c_2 T + c_3 E_a e^{-\frac{E_a}{T}}}{T^2} \quad (9)$$

Donde T es la temperatura[K] y c_1 , c_2 , c_3 , E_a y θ son constantes.

Para el caso de la vaina, [Hagrman y Reymann \(1993\)](#) propone dos contribuciones a la capacidad calorífica. Por un lado, la capacidad calorífica del zircaloy en función de la temperatura, y por otro lado, la capacidad calorífica aparente, que corresponde a la cantidad extra calor que se necesita para la disolución de hidruros precipitados. Este modelo es válido para el rango $300K < T < 1090K$. El modelo implementado actualmente en DIONISIO, propone una correlación lineal de la capacidad calorífica en función de la temperatura, sin tener en cuenta la precipitación de hidruros. Esto cambia en el periodo de almacenamiento, donde las bajas temperaturas hacen que la precipitación de hidruros cobre importancia. Por lo tanto, para este periodo, resulta conveniente utilizar el modelo descrito en [Hagrman y Reymann \(1993\)](#). Este interpola linealmente los valores de la tabla 1, y adiciona la capacidad calorífica aparente obtenida con la Ec. (10).:

Temperatura [K]	300	400	640	1090
Capacidad Calorifica [J/Kg.K]	281	302	331	335

Tabla 1: Capacidad calorífica para la vaina

$$\begin{aligned}
 TSOL &= \frac{A}{\ln\left(\frac{A}{H}\right)} \\
 CHSCP &= \frac{ABC}{T^2} \left[e^{-\left(\frac{B}{T}\right)} \right] \left[e^{\left(\frac{T-TSOL}{0,02TSOL}\right)+1} \right]^{-1}
 \end{aligned} \tag{10}$$

Donde CHCP es la adición a la capacidad calorífica debido a la energía extra para disolver hidruros [J/Kg.K]; T la temperatura [K]; TSOL es la Temperatura mínima requerida para completar la solución de hidruros de una cierta concentración de hidrógeno en el zircaloy [K]; A es 1.332e5 [ppm de hidrogeno]; B es 4.401e3 [K]; C es 45.7 [J/Kg.ppm hidrógeno]; H es la concentración de hidrógeno [fracción en peso].

2.3. Expansión térmica

Los modelos implementados actualmente en DIONISIO, tanto para el UO₂ como para la vaina, son los descritos por [Hagrman y Reymann \(1993\)](#). En el caso del UO₂, el modelo calcula la deformación lineal causada por la expansión térmica en función de la temperatura del UO₂ sólido, válido en el rango desde T=300K hasta la temperatura de fusión (Eq. (11)).

$$\frac{\Delta L}{L_0} = K_1 T - K_2 + K_3 e^{-\frac{E_D}{KT}} \tag{11}$$

Donde L/L₀ es la deformación lineal causada por la expansión térmica [adim]; K_b la constante de Boltzmann [1.38e-23 J/K]; K₁, K₂, K₃ y E_D son constantes.

En el caso de la vaina, la expansión térmica es asimétrica, por lo que $\epsilon_{11} \neq \epsilon_{33}$, donde $\epsilon_{11} = \epsilon_{22}$ son las deformaciones producidas por la expansión térmica en las direcciones *x* e *y* respectivamente, mientras que ϵ_{33} es la axial (eje *z*). Este modelo es valido para el rango 300°C < T ≤ 1083°C, por lo que es valido para la etapa de almacenamiento (Eq. (12)).

$$\begin{aligned}
 \epsilon_{11} &= (4,95E - 6)T - 1,485E - 3 \\
 \epsilon_{33} &= (1,26E - 5)T - 3,780E - 3
 \end{aligned} \tag{12}$$

Donde ϵ_{11} es la deformación lineal en la dirección *x* [m/m]; ϵ_{22} es la deformación lineal axial [m/m] y T es la temperatura [K].

2.4. Parámetros mecánicos

El modulo de Young del UO₂ depende principalmente de la temperatura y la densidad, y en menor medida, de la relación oxígeno-uranio y del quemado. El modelo descrito en [Hagrman y Reymann \(1993\)](#), que es el utilizado por DIONISIO, tiene validez comprobada para temperaturas mayores a 400 K. Aquí también se reportan resultados experimentales de diferentes autores para temperaturas T<400K y diferentes densidades del UO₂. Se extrapoló el modelo a temperaturas T<400K y se compararon los resultados con los obtenidos experimentalmente por [Padel y de Novion \(1969\)](#), obteniendo resultados favorables. Respecto al módulo de Poisson, [Hagrman y Reymann \(1993\)](#) propone un valor constante. Este modelo presenta desviaciones del orden del 5 % respecto al implementado en DIONISIO, que es función de la temperatura. Basado en los resultados, se concluye que ambos modelos son aptos para aplicarlos en almacenamiento. Estos se describen en las Eq. (13) y Eq. (14) respectivamente.

$$E_{UO_2} = 2,334x10^{11}(1 - 2,752(1 - D))(1 - 1,0915x10^{-4}T) \tag{13}$$

$$\mu = 1,32(1 - 0,26(1 - D)) - 1 \quad (14)$$

Donde E_{UO_2} es el módulo de Young [N/m²]; μ el módulo de Poisson [adim]; D la fracción de densidad teórica [adim] y T la temperatura [K].

El módulo elástico de la vaina es afectado principalmente por la temperatura y la concentración de oxígeno. La fluencia de neutrones rápidos, el trabajo en frío y la textura también afectan este parámetro, pero en menor medida. El modelo implementado en DIONISIO es el descrito por Hagrman y Reymann (1993) y cuenta con expresiones para la fase alfa ($T \leq 1090K$) y beta ($T > 1090K$) del zirconio. La expresión correspondiente a la fase alfa cubre el rango de temperaturas presente en almacenamiento, por lo que es el que resulta de interés en este trabajo (Eq. (15)).

Para el módulo de Poisson de la vaina, Hagrman y Reymann (1993) propone un valor constante, válido para todo el rango de temperaturas ($T < T_f$). Este valor se comparó con el modelo implementado en DIONISIO, y se encontró que en el rango de temperaturas de almacenamiento, las diferencias eran importantes (del orden del 15 %). Por ese motivo se optó por el valor propuesto por Hagrman y Reymann (1993) para esta condición.

$$\begin{aligned} K_1 &= (6,61x10^{11} + 5,912x10^8 T) \Delta \\ K_2 &= -2,6x10^{10} C \\ K_3 &= 0,88 + 0,12e^{-\frac{\phi}{10^{25}}} \\ E_{Zr} &= \frac{(1,088x10^{11} - 5,475x10^7 T + K_1 + K_2)}{K_3} \end{aligned} \quad (15)$$

$$\mu = 0,3 \quad (16)$$

$$\begin{aligned} K_1 &= (7,07x10^{11} - 2,315x10^8 T) \Delta \\ G &= \frac{(4,04x10^{10} - 2,168x10^7 T + K_1 + K_2)}{K_3} \end{aligned} \quad (17)$$

Donde E_{Zr} es el módulo de Young para Zircaloy [Pa]; G el módulo de elasticidad transversal [Pa]; μ el módulo de Poisson [adim]; T la temperatura de la vaina [K]; K1 un coeficiente que contempla el efecto de la oxidación [Pa]; K2 un coeficiente que contempla el efecto del trabajo en frío [Pa]; K3 un coeficiente que contempla el efecto de la fluencia de neutrones rápidos [adim]; Δ son los Kg de oxígeno/Kg de Zircaloy [adim]; C el trabajo en frío [adim] y ϕ la fluencia de neutrones rápidos [n/m²].

3. MODELOS PARA ALMACENAMIENTO EN PILETA

3.1. Calor de decaimiento

Una vez que el reactor se apaga, el combustible permanece un cierto periodo dentro del mismo refrigerándose por convección forzada, al cual llamamos periodo de transición. Para pasar después a piletta, donde la refrigeración se realiza por convección natural. Terminadas las fisiones dentro del combustible, que son las responsables de la producción de energía, los productos de fisión creados durante la operación del reactor decaen por diferentes mecanismos durante años, generando un calor residual o de decaimiento. El calor de decaimiento depende del tiempo de operación del reactor, desde el encendido hasta el apagado, y se debe principalmente a la emisión de partículas beta negativo y gamma, y en menor medida a la desintegración de

isótopos generados por activación neutrónica durante el periodo de operación. Para modelar este fenómeno se ha desarrollado un modelo basado en Ragheb (2014). Este modelo contempla tanto el decaimiento de los productos de fisión, como el decaimiento de los isótopos ^{239}U y ^{239}Np , producidos durante la etapa de operación.

En la Eq. (18) se describe el modelo, y en las Fig. 1a y Fig. 1b se muestra la relación de potencias (potencia de operación respecto de la potencia un determinado tiempo luego del apagado), para un periodo de un minuto y un año luego del apagado del reactor, y para condiciones típicas de operación de un reactor PWR que operó durante un año:

$$\begin{aligned}
 P_1(t) &= \sum_{i=1}^{n-1} 6,48,10^{-3} P_{0(i,i+1)} \{[(t + T_0 - T_{i+1})^{-0,2} - (t + T_0 - T_i)^{-0,2}] \\
 &\quad + 0,0025[e^{-42,3529t} - e^{-42,3529(t+T_0)}] + 0,0013[e^{-0,2979t} - e^{-0,2979(t+T_0)}]\} \\
 P_2(t) &= \sum_{i=1}^{n-1} P_{0(i,i+1)} \{(t + T_0 - T_{i+1} + 10)^{-0,2} - (t + T_0 - T_i + 10)^{-0,2} \\
 &\quad - 0,87[(t + T_0 - T_{i+1} + 2,10^7)^{-0,2} - (t + T_0 - T_i + 2,10^7)]\}
 \end{aligned} \tag{18}$$

si $P_1(t) > P_2(t)$:

$$P(t) = P_1(t)$$

sino :

$$P(t) = P_2(t)$$

Donde el subíndice i simboliza los instantes de comienzo y finalización de las rampas de potencia; t el tiempo transcurrido desde el apagado del reactor [días]; T_0 representa el tiempo total de operación del reactor [días]; $P(t)$ la potencia en el instante t , después del apagado del reactor [MWth]; $P_{0(i,i+1)}$ es la potencia media con la que operó el reactor entre el periodo T_i y $T_{(i+1)}$ [MWth].

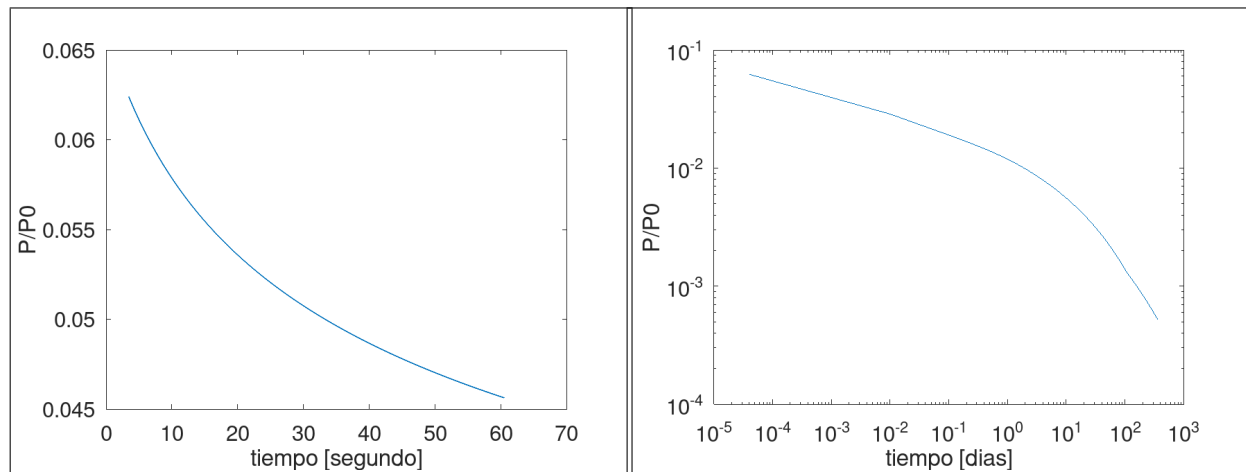
3.2. Modelo termohidráulico

Actualmente el código DIONISIO cuenta con un modelo termohidráulico de convección forzada que permite calcular la temperatura en la superficie de la barra para un determinado flujo de calor. En la etapa de almacenamiento, este modelo no es aplicable, ya que el agua de la pileta se encuentra en estado estanco, y el mecanismo que entra en juego en estas condiciones es el de convección natural.

El problema se modeló suponiendo una sola barra sumergida en el fluido. Bajo esta aproximación, resulta de interés el estudio corresponden a cilindros verticales sumergidos en agua, particularmente la categoría denominada *cilindros verticales esbeltos o delgados*.

La documentación quizás más difundida para este último grupo, corresponde a las experiencias realizadas por Minkowycz y Sparrow (1974), Fujii et al. (1970), y a los resultados experimentales obtenidos por Cebeci (1974), que luego fueron correlacionadas por Popiel (2008).

El parámetro de entrada disponible en las barras combustible, es el flujo de calor debido a la potencia generada por el decaimiento de los productos de fisión, siendo la temperatura de la superficie el parámetro a determinar en este problema. En definitiva, el modelo buscado debe contemplar régimen turbulento, cilindro esbelto, y flujo de calor como condición de borde. Se



(a) un minuto luego del apagado del reactor.

(b) un año luego del apagado del reactor.

Figura 1: Fracción de potencia vs. tiempo para condiciones de operaciones típicas de reactor PWR que operó durante un año.

encontró que las correlaciones que mejor se ajustan a estos requerimientos son las obtenidas por Fujii et al. (1970).

El código DIONISIO realiza una discretización en sectores de la longitud axial de la barra combustible, y realiza los cálculos en cada uno de los sectores. El modelo de Fujii calcula el número de Nusselt local, por lo que el problema se resuelve calculando el mismo en la mitad de cada sector, y asignando ese valor a todo el sector. Con este valor se calcula el coeficiente de transferencia térmica por convección, y luego la temperatura en la superficie en cada sector mediante la ley de enfriamiento de Newton. El modelo se implementa de forma iterativa, comenzando con una temperatura de superficie arbitraria.

En Eq. (19) a Eq. (21) se describe el modelo:

$$Gr_x^* = \frac{g\beta q'' x^4}{k\nu^2} \quad (19)$$

Para régimen laminar ($1,10^8 < Gr_x^* Pr \leq 1,10^{13}$):

$$(Nu_x)_e = 0,58(Gr_x^* Pr)_e^{\frac{1}{5}} \quad (20)$$

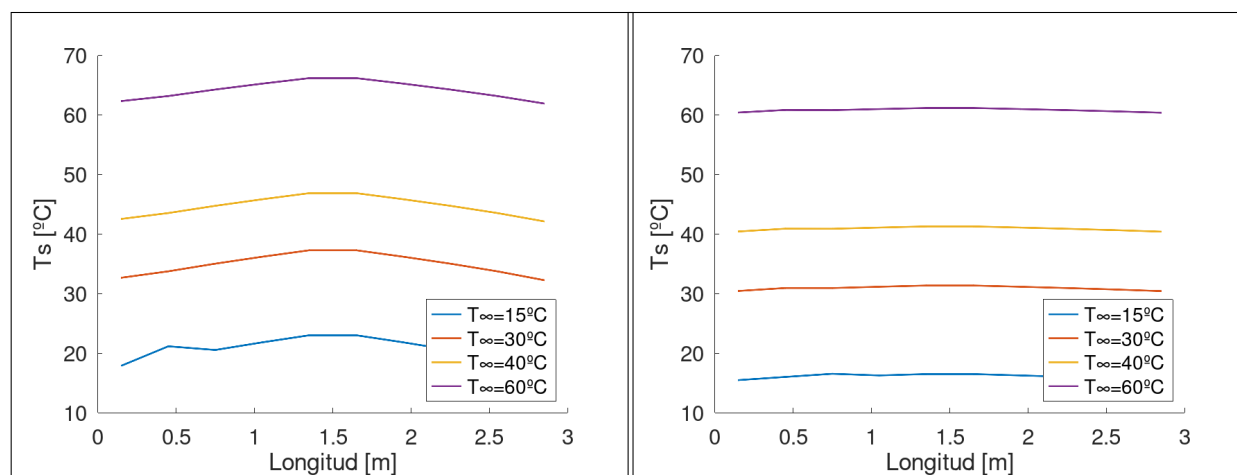
Para régimen turbulento ($1,10^{13} < Gr_x^* Pr \leq 1,10^{15}$):

$$(Nu_x)_e = 0,215(Gr_x^* Pr)_e^{\frac{1}{4}} \quad (21)$$

Donde $(*)_e$ indica que las propiedades del líquido deben ser calculadas a la temperatura $T_e = T_s - \frac{1}{4}(T_s + T_\infty)$, a excepción del coeficiente de expansión térmica β , que se debe calcularse en $T_m = \frac{1}{2}(T_s + T_\infty)$. El subíndice x indica que se trata de magnitudes locales. T_s y T_∞ representan la temperatura de superficie de la vaina, y del agua respectivamente [K]. Nu es el número de Nusselt [adim]; Gr_x^* el número Grashof modificado [adim]; q'' la potencia o flujo de calor por unidad de superficie [W/m^2]; k el coeficiente de conductividad térmica [$W/m^\circ C$] y ν la viscosidad cinemática [m^2/s].

En las Fig. 2a y Fig. 2b se muestran perfiles axiales de temperaturas de superficie de la vaina (T_s), para diferentes temperaturas del agua (T_∞), luego de 1 día y 5 años del apagado del reactor.

Se utilizó el modelo descrito en las Eq. (19) a Eq. (21), discretizando en 10 sectores una barra de 3 metros de longitud.



(a) un día luego del apagado del reactor.

(b) cinco años luego del apagado del reactor.

Figura 2: Temperatura de la superficie vs. longitud de la barra.

3.3. Crecimiento de óxido en la superficie externa de la vaina

En condiciones de operación normal del reactor, este fenómeno ocurre en dos etapas: la primera de ellas denominada de pre-transición, donde el crecimiento de la capa de óxido obedece a una ley no lineal, y luego se llega a un espesor crítico denominado de transición, a partir del cual el crecimiento está representado por un comportamiento lineal, denominado post-transición. El espesor de transición depende principalmente de la temperatura, presentando una leve variación respecto de la misma. Se sabe que el combustible se dispondrá en pileta luego de un cierto periodo de operación dentro del reactor, en el que se puede asumir que se superó el espesor de transición de la capa de óxido, por lo que el crecimiento en este periodo estará determinado por las leyes que gobiernan la etapa de post-transición.

Existen diversos trabajos que publican valores de crecimientos de la capa de óxido en etapa de almacenamiento, obtenidos mediante procedimientos experimentales Rothman (1984); IAEA (1998); Johnson (1977); IAEA (2002). En IAEA (2002) se reportan curvas de valores estimados de crecimiento de óxido en vainas de Zircaloy en etapa de almacenamiento, que muestran que el espesor de óxido alcanza aproximadamente $3.7 \mu\text{m}$ en los 2 primeros años, y luego es despreciable. Este es sin lugar a dudas el resultado más conservador de los consultados. Utilizando estos resultados, se implementó el método de mínimos cuadrados para encontrar una función que ajuste los datos en los dos primeros años. Se encontró que el mejor ajuste se obtiene utilizando un polinomio de grado 5 (Eq. (23)). Esta función será la utilizada para representar el crecimiento en los dos primeros años de almacenamiento. Para el periodo posterior a los dos años, se utilizó el modelo de Hargman y Reymann (1993), y se modificó realizando ajustes en los coeficientes para representar los valores más conservadores reportados en las referencias mencionadas (Eq. (24)).

Se obtuvo el siguiente modelo:

si $t < 0.1$:

$$Ox = 5t \quad (22)$$

si $0.1 < t < 2$:

$$Ox = 1,207t^5 - 7,163t^4 + 16,06t^3 - 17,12t^2 + 9,975t - 0,329 \quad (23)$$

si $t \geq 2$:

$$A = 1,203,10^2 e^{(-7,118,10^3 T_c)}$$

$$Ox = 3,625 + 1388,2(At)e^{-\frac{14080}{T}} \quad (24)$$

Donde Ox es el espesor de capa de óxido [μm]; t el tiempo total acumulado [años]; T la temperatura de la interface óxido-metal [K] y T_c la temperatura interface óxido-refrigerante [K]

En la Fig. 3 se muestra el crecimiento para un periodo de 100 años. Se compara el modelo de las Eq. (22) a Eq. (24) con el reportado en IAEA (2002). Se puede ver el comportamiento similar en los dos primeros años, y luego la sobreestimación de nuestro modelo, que se obtiene utilizando Eq. (24).

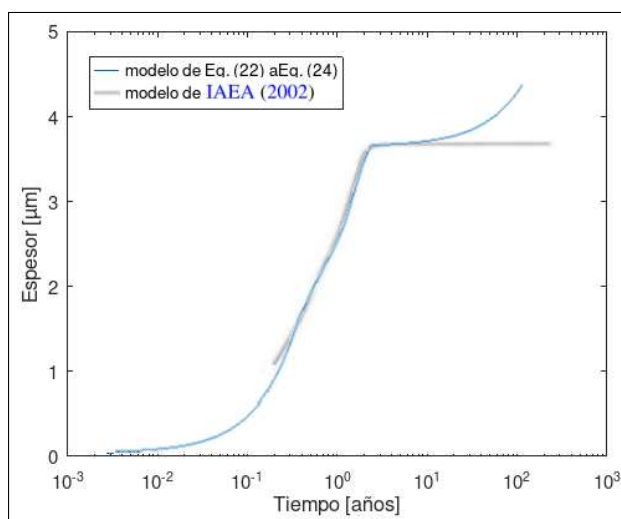


Figura 3: Crecimiento de óxido vs. tiempo. Comparación modelo descrito en Eq. (22) a Eq. (24), contra modelo reportado en IAEA (2002).

3.4. Captura de hidrógeno

Una fracción del hidrógeno total generado en el proceso de oxidación, ingresa a través de las vacancias del oxígeno en la superficie de la capa de óxido e ingresa a la vaina. La cantidad de hidrógeno capturado depende de la temperatura y de la etapa en la que se encuentre la barra (in-pile o out-pile). Comparado con la etapa de operación del reactor, la tasa de captura de hidrógeno en etapa de almacenamiento es baja (relacionado con el lento crecimiento de la capa de óxido en esta etapa). Sin embargo, aquí toma mayor importancia el precipitado de hidruros debida a las bajas temperaturas.

Hagrman y Reymann (1993) propone correlaciones para determinar la cantidad de hidrógeno capturado por la vaina en condiciones in-pile y out-pile. Sin embargo, las correlaciones out-pile son solo válidas para el rango de temperaturas similar al de operación, es decir $500\text{K} < T < 650\text{K}$. Esta restricción está determinada por el parámetro que representa la fracción de

hidrógeno capturado (C_{hup}), que es válido solo para dicho rango. En Kato et al. (2014) se realizaron mediciones de crecimiento de óxido y captura de hidrógeno en la vaina para condiciones de almacenamiento similares a las de piletas ($303K < T < 353K$), donde se encontraron valores de C_{hup} válidos para este rango. Por lo tanto, para la etapa de almacenamiento en DIONISIO se utilizará el modelo reportado por Hagerman y Reymann (1993), pero utilizando el valor de C_{hup} propuesto por Kato et al. (2014).

El modelo resultante es el siguiente:

$$H = H_0 + H_1 + H_{cf} \quad (25)$$

$$H_{cf} = \left[\frac{(9,10^5)d_0}{d_0^2 - d_i^2} \right] \frac{C_{hup}}{8} (Ox - Ox_{ANT}) + H_{ci}$$

Donde H_0 es la concentración inicial de hidrógeno debido a impurezas de fabricación [ppm]; H_1 la concentración de hidrógeno debido al contenido de agua en el combustible [ppm]; H_{cf} la fracción en peso de hidrógeno capturado por la vaina al final de un paso temporal [ppm]; H_{ci} la fracción en peso de hidrógeno capturado por la vaina al inicio de un paso temporal [ppm]; d_0 el diámetro externo de la vaina [m]; d_i el diámetro interno de la vaina [m]; Ox el espesor de capa de óxido al final del paso temporal [m]; Ox_{ANT} el espesor de capa de óxido al inicio del paso temporal [m] y C_{hup} es 0.88 para el rango de temperaturas de almacenamiento.

En la Fig. 4 se muestra la concentración de hidrógeno en la vaina respecto al tiempo para un reactor PWR, utilizando el modelo descrito en Eq. (25). Se asumieron diferentes temperaturas de la superficie, y un periodo de almacenamiento en piletas de 100 años. Se considera que el combustible comienza su etapa en piletas con una concentración inicial de hidrógeno de 215 ppm.

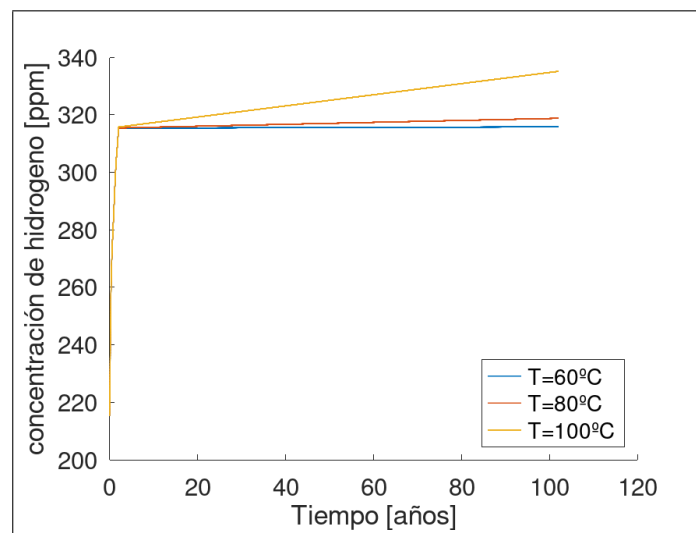


Figura 4: Concentración de hidrógeno en la vaina para concentración inicial de 215 ppm, periodo de 100 años, y diferentes temperaturas de la superficie de la vaina.

3.5. Modelado del Creep

En la mayoría de los materiales cerámicos y metálicos, el fenómeno de creep se produce a partir de temperaturas de aproximadamente $0.4T_f$, donde T_f es la temperatura de fusión.

Por debajo de esta temperatura puede suceder que no exista creep, o que solo exista la etapa transitoria (o primera etapa), en la cual el creep disminuye con el tiempo, mostrando deformaciones despreciables en la mayoría de los casos (Wolfe y Kaufman, 1967).

Si consideramos el rápido descenso de la potencia de decaimiento luego del apagado del reactor, podemos interpretar que la temperatura de la pastilla y vaina decaen rápidamente por debajo de la temperatura mínima para el fenómeno de creep. Esto hace innecesario evaluar el fenómeno tanto en la etapa de transición, como en su disposición en pileta (Peehs y Fleisch, 1985).

4. CONCLUSIONES

Los modelos correspondientes a parámetros térmicos y mecánicos implementados en DIONISIO resultaron aptos, después de leves modificaciones y testeos, para ser utilizados en el rango de temperaturas características del periodo de almacenamiento. Se han obtenido modelos para la capacidad calorífica, para el calor de decaimiento, el uptake de hidrógeno y el crecimiento de la capa de óxido de la literatura Hagrman y Reymann (1993), Geelhood y Luscher (2014). Por otro lado, se ha modelado la termo hidráulica del canal que rodea a una barra combustible en condiciones de pileta.

En particular, se ha verificado que la tasa de crecimiento de óxido y la captura de hidrógeno en el periodo de almacenamiento resulta relativamente baja. Sin embargo, en estas condiciones cobra importancia la precipitación de hidruros, ya que tiene una influencia directa en la generación y propagación de fisuras. Esto da lugar a la posibilidad de estudiar este fenómeno en el futuro, que además se ve favorecido por el hecho de que la tensión circunferencial de la vaina será mayor en pileta, debido a que en la presión interna de la barra no es contrarrestada por la presión externa como sucede en etapa de operación. Por su parte el fenómeno de creep es insignificante tanto para la etapa de transición como para la etapa final de almacenamiento.

En próximas etapas de este trabajo se incluirán estos modelos en un submódulo del código DIONISIO que iniciara al terminar el periodo de irradiación normal del elemento combustible. De lo analizado hasta el momento, se puede inferir que no se esperan condiciones termomecánicas ni termoquímicas críticas durante la estadía del combustible en pileta. Sin embargo, es fundamental conocer estos efectos, ya que son necesarios para evaluar la posterior disposición en seco del combustible, donde las condiciones de enfriamiento son más exigentes y los tiempos de almacenamiento mucho más largos.

REFERENCIAS

- Cebeci T. Laminar-free-convective-heat transfer from the outer surface of a vertical circular cylinder. *Proceedings of the 5th international heat transfer conference*, páginas 1–64, 1974.
- Fujii T., Takeuchi M., Fujii M., Suzaki K., y H. U. Experiments on natural-convection heat transfer from the outer surface of a vertical cylinder to liquids. *J Heat Mass Transfer*, 1970.
- Geelhood K. y Luscher W. *FRAPCON-3.5: A Computer Code for the Calculation of Steady-State, Thermal-Mechanical Behavior of Oxide Fuel Rods for High Burnup*. 2014.
- Hagrman D. y Reymann G. *MATPRO: A Handbook of Materials Properties for use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod BEHAVIOR*. 1993.
- IAEA. Storage of water reactors spent fuel in water pools, survey of world experience. *TECHNICAL REPORTS SERIES*, No. 218, 1982.
- IAEA. *Durability of spent nuclear fuels and facility components in wet storage*. IAEA-TECDOC-1012, 1998.

- IAEA. *Long Term Storage of Spent Nuclear Fuel Survey and Recommendations*. IAEA-TECDOC-1293, 2002.
- Johnson A. *Behaviour of Nuclear Fuel in Water Pool Storage*. Pasific Northwest Laboratory. USA, 1977.
- Johnson jr A. *Behavior of Spent Nuclear Fuel in Water pool Storage*. PNL-Battelle, 1977.
- Kaminski M. Engineered product storage under the advanced fuel cycle initiative. *Journal of Nuclear Materials* 347, Part II: Conceptual storage scenarios, 2005.
- Kato O., Tanabe H., Sakuragi T., Nishimura T., y Tateishi T. *Corrosion Tests of Zircaloy Hull Waste to Confirm Applicability of Corrosion Model and to Evaluate Influence Factors on Corrosion Rate under Geological Disposal Conditions*. Research Institute Inc. JAPAN, 2014.
- Lavigne O., Shoji T., y Sakaguchi K. On the corrosion behavior of zircaloy-4 in spent fuel pools under accidental conditions. *Journal of Nuclear Materials* 426, 2012.
- Leenaers A., Sannen L., y Van den Berghe S.; Verwerft M. Oxidation of spent uo2 fuel stored in moist environment. *Journal of Nuclear Materials* 317, 2003.
- Lemes M., Denis A., y Soba A. Simulation of nuclear fuel behavior in accident conditions with the dionisio code. *Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science*, 5, 2019.
- Minkowycz W. y Sparrow E. Local nonsimilar solutions for natural convection on a vertical cylinder. *J Heat Transfer*, 96:178–183, 1974.
- Padel A. y de Novion C. Constants elastiques des carbures, nitures et oxydes d'uranium et de plutonium. *Journal of Nuclear Materials*, 33:40–51, 1969.
- Peehs M. y Fleisch j. *LWR Spent Fuel Storage Behaviour*. 1985.
- Popiel C. Free convection heat transfer from vertical slender cylinders: a review. *Heat Transfer Eng*, 29:521–536, 2008.
- Ragheb M. Decay heat generation in fission reactors. 2014.
- Rothman A. *Corrosion and Degradation Mechanisms of Zircaloy Cladding on Spent Nuclear Fuel in a Tuff Repository*. Lawrence Livermore National Laboratory. USA, 1984.
- Williamson R., Hales J., Novascone S., Tonks M., Gaston D., Permann C., Andrs D., y Martineau R. Multidimensional multiphysics simulation of nuclear fuel behavior. *Journal of Nuclear Materials* 423, 2012.
- Wolfe R. y Kaufman S. *Mechanical Propieties of Oxide Fels*. LSBR/LWB development program, 1967.