

MODELADO DE PASTILLAS DOPADAS PARA COMBUSTIBLES DE TECNOLOGÍA AVANZADA

MODELING OF DOPED PELLETS FOR ADVANCED TECHNOLOGY FUELS

Matias E. Loza Peralta^{a,b}, Ezequiel Goldberg^a, Martín R. Lemes Lapasta^a y Alejandro Soba^{a,c}

^aComisión Nacional de Energía Atómica. Gerencia Combustibles Nucleares. Sección Códigos y Modelos. Av. Gral. Paz 1499, 1650 Buenos Aires, Argentina, loza@cnea.gov.ar, ezequielgoldberg@cnea.gov.ar, lemes@cnea.gov.ar, soba@cnea.gov.ar

^bComisión Nacional de Energía Atómica. Instituto Sábito.

^cCONICET

Palabras clave: elementos finitos, barras combustibles, ATF, pastillas dopadas, DIONISIO.

Resumen. A partir del accidente de Fukushima, la industria nuclear internacional empezó a realizar esfuerzos en la dirección de aumentar la seguridad de los reactores de potencia. Una de las maneras en que se busca alcanzar ese objetivo es modificar los materiales con que se construyen los elementos combustibles, para que le den al operador del reactor mayor tiempo de reacción para accionar los sistemas de seguridad. De esta manera, surgieron los combustibles tolerantes a accidentes o de tecnología avanzada (ATF, por sus siglas en inglés) que reúnen los principales materiales que cumplen con esas características, manteniendo o mejorando el rendimiento del mismo en operación normal. La Sección Códigos y Modelos participa con el código DIONISIO de esfuerzos internacionales dentro del proyecto ATF-TS del OIEA para modelar el comportamiento de dichos combustibles. En este trabajo, se presentan los avances realizados en cuanto a la inclusión de modelos para pastillas de dióxido de uranio dopadas con óxido cromo y su validación con datos experimentales provistos por el proyecto ATF-TS.

Keywords: Finite elements, fuel rods, ATF, doped pellet, DIONISIO.

Abstract. After the Fukushima accident, the international nuclear industry began to make efforts in the direction of increasing the safety of power reactors. One of the ways in which this objective is achieved is to modify the materials with which the fuel elements are built so that they give the reactor operator more reaction time to activate the safety systems. In this way, accident-tolerant or advanced technology fuels (ATF) arose and they gather the main materials that meet these characteristics while maintaining or improving their performance in normal operation. The Codes and Models Section participates with the DIONISIO code in international efforts within the IAEA ATF-TS project to model the behavior of these fuels. In this paper, the advances made regarding the inclusion of models for chromium oxide-doped uranium dioxide pellets and their validation with experimental data provided by the ATF-TS project are presented.

1. INTRODUCCIÓN

En las últimas décadas, la industria nuclear y organismos internacionales de energía atómica se han esforzado en el desarrollo de nuevos diseños de reactores nucleares de potencia y de sus materiales componentes, en particular los relacionados con los combustibles nucleares, con el objetivo de que sean más eficientes y seguros. En su diseño, estos nuevos reactores, denominados de IV generación, requieren la utilización de materiales innovadores que puedan mantener la integridad de los elementos combustibles durante un evento de accidente o, en caso de falla, lograr prolongar el tiempo de ocurrencia, dando más tiempo a los sistemas de seguridad del núcleo para su activación (Pasamehmetoglu, 2018).

Este grupo de nuevos materiales, que permitan en algún sentido mejorar las propiedades de aquellos en uso actualmente en la industria nuclear, o que prolonguen el tiempo de ocurrencia de un fenómeno no deseable, se conocen como materiales ATF (Advanced Technology Fuels) (Pasamehmetoglu, 2018). Estos han dado lugar a un nuevo concepto de tecnología de combustibles avanzados, también conocidos como combustibles tolerantes a accidentes.

Dentro de este marco, a nivel internacional, se están llevando a cabo esfuerzos para desarrollar herramientas de simulación de combustibles que contengan estos materiales. Uno de estos proyectos es el ATF-TS (Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels) del Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA, 2018), que surgió de la fusión de dos proyectos anteriores: FUMAC (Fuel Modelling in Accident Conditions) (OIEA, 2019) y ACTOF (Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance) (OIEA, 2020).

El proyecto ATF-TS busca comprender y abordar diferentes factores que afectan el diseño, la fabricación y el comportamiento del combustible en operación, así como los materiales nucleares innovadores utilizados en reactores de potencia, con el fin de aumentar la disponibilidad tecnológica de materiales candidatos a ATF (OIEA, 2018).

Desde la Sección Códigos y Modelos, se está trabajando en la adaptación del código DIONISIO, que simula el comportamiento de barras combustibles, para incluir nuevas librerías de materiales ATF tanto para vainas (Loza Peralta et al., 2022) como para pastillas (Loza Peralta et al., 2021), simulando las principales propiedades de las mismas.

Dentro de los materiales explorados para pastilla se encuentran el UO_2 dopado con Cr_2O_3 que mejora la respuesta de las pastillas frente a condiciones normales de operación y frente a eventos de accidente (Pasamehmetoglu, 2018). Con esta mejora se buscan dos objetivos: aumentar la retención de gases de fisión y minimizar la interacción pastilla-vaina (PCI). La adición de Cr_2O_3 en el rango de las 1000 ppm genera un aumento en el tamaño de grano, que se traduce en una disminución de la resistencia mecánica, mejorando así las condiciones de interacción mecánica entre la pastilla y la vaina (PCMI) (Cooper et al., 2021). A su vez produce un aumento del camino que deben realizar los gases de fisión para llegar al borde de grano y ser liberados al volumen libre de la barra combustible. Este segundo fenómeno compite con el aumento en la difusividad de dichos gases debido al dopado (Cooper et al., 2021).

En este trabajo, se presentan los modelos de liberación de gases de fisión, principalmente Xe y Kr incluidos en el código DIONISIO para pastillas de UO_2 dopadas con Cr_2O_3 . Los resultados de las simulaciones con los modelos incluidos son comparados con experimentos provistos por el OIEA dentro del marco del proyecto ATF-TS en el cual participa DIONISIO.

2. MODELADO DE LIBERACIÓN DE GASES DE FISIÓN

2.1. Modelo tradicional de DIONISIO

Para estudiar detalladamente la liberación de gases de fisión de los materiales de combustibles de tecnología avanzada, es necesario entender el modelo original de DIONISIO para combustibles de UO_2 tradicionales. A continuación presentaremos las generalidades más importantes de dicho modelo.

Para modelar la liberación de gases de fisión en combustibles de dióxido de uranio, se consideran granos esféricos y se simula la difusión de gases poco solubles (Xe y Kr) producidos por la fisión del combustible. También es necesario tener en cuenta la formación de burbujas intragranulares que funcionan como trampas y que se ubican en sitios preferenciales de la red cristalina. Eventualmente, fragmentos de fisión de alta energía pueden re-dissolver las burbujas si impactan con ellas. Todo esto se traduce en un equilibrio dinámico entre la captura y la liberación de átomos de gas, convergiendo hacia la difusión de los mismos hasta los bordes de grano y formando burbujas intergranulares. Una vez que esas burbujas se saturan de gas, se expanden y se interconectan con otras burbujas hasta llegar al borde del combustible, liberándose al volumen libre de la barra (González et al., 2016).

Para calcular la concentración de gases de fisión en el borde de grano, se resuelve la ecuación de difusión efectiva en coordenadas esféricas en la dirección radial por el método de elementos finitos. La ecuación es:

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = D' \left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} \right) + \beta \quad (1)$$

donde ψ es la concentración total de átomos del gas (libres y atrapados) en la matriz $\left[\frac{at}{m^3}\right]$, t el tiempo de irradiación [s], r la coordenada radial en el grano esférico [m], D' es el coeficiente de difusión efectiva de átomos gaseosos $\left[\frac{cm^2}{s}\right]$ y β la tasa de generación de átomos de gas producidos por evento de fisión $\left[\frac{at}{m^3s}\right]$. Las condiciones de contorno consideran simetría esférica $\left(\frac{\partial \psi}{\partial r}(r=0) = 0\right)$ y borde de grano como sumidero perfecto $(\psi(r=a) = 0)$. Por su parte, el coeficiente de difusión efectivo queda expresado como:

$$D' = D \frac{b}{b+g} \quad (2)$$

donde g y b son las probabilidades de captura y liberación de gas en trampas respectivamente, y D es el coeficiente de difusión en $\left[\frac{cm^2}{s}\right]$ que contiene tres contribuciones. Para altas temperaturas, predomina el mecanismo de vacancias catiónicas térmicamente activadas modeladas por una contribución de Arrhenius (Denis y Piotrkowski, 1996; Lösönen, 2002; Maldován et al., 1999)

$$D_1 = 7,6 \cdot 10^{-10} \cdot \exp\left(-\frac{7 \cdot 10^4}{RT}\right) \quad (3)$$

donde R es la constante de los gases ideales en $\frac{cal}{mol \cdot K}$ y T es la temperatura en K. Para temperaturas intermedias, entre 600 y 1400 °C, predomina el mecanismo regulado por las vacancias e intersticiales producidas por la irradiación. Este segundo término queda expresado como (Denis y Piotrkowski, 1996; Lösönen, 2002; Maldován et al., 1999):

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

donde $S = \sqrt[3]{\Omega}$ es la distancia de salto de átomos, Ω es el volumen atómico, $j_V = 10^{13} \cdot C_V^0$ es la frecuencia de salto de vacancias, $C_V^0 = \exp\left(\frac{-55200}{RT}\right)$ y C_V es la fracción de sitios de vacancias. Para bajas temperaturas, predominan los mecanismos atérmicos de *recoil* y *knock out*. La tasa de fisiones F es la constante de proporcionalidad del tercer término (Denis y Piotrkowski, 1996; Lösönen, 2002; Maldován et al., 1999):

$$D_3 = 8 \cdot 10^{-40} F \quad (5)$$

Sumando las tres contribuciones obtenemos el modelo de Turnbull et al. (1989):

$$D = D_1 + D_2 + D_3 \quad (6)$$

El resto de los detalles del modelo se pueden encontrar en González et al. (2016).

2.2. Adaptación del modelo para combustibles dopados

Para adaptar el modelo de liberación de gases de fisión para combustibles dopados, es necesario modificar el coeficiente de difusión y cambiar el tamaño de grano inicial del combustible. Esto último puede hacerse en el código mediante la modificación de las entradas. Para cambiar la difusividad, Cooper et al. (2021) propone una modificación fundamentada en estudios de primeros principios, donde se agrega un factor exponencial para los dos primeros términos; el tercer término se mantiene igual dado que los fenómenos que lo producen son atérmicos. Es así que la difusividad queda expresada como:

$$D = \exp\left(\frac{\Delta H_1}{k_B} \left[\frac{1}{T} - \frac{1}{T_1}\right]\right) D_1^{\text{sin dopar}} + \exp\left(\frac{\Delta H_2}{k_B} \left[\frac{1}{T} - \frac{1}{T_2}\right]\right) D_2^{\text{sin dopar}} + D_3^{\text{sin dopar}} \quad (7)$$

donde ΔH_1 , ΔH_2 , T_1 y T_2 son parámetros dados por Cooper et al. (2021).

3. EXPERIMENTOS

3.1. IFA 716

El experimento IFA 716 (Brémond, 2011) consta de 6 barras combustibles instrumentadas, fabricadas de distintos materiales, las cuales son sometidas a una historia de potencia dentro del reactor Halden. La barra 1 y la barra 6 están hechas con pastilla de UO_2 dopadas con Cr_2O_3 con distintas concentraciones (1600 ppm y 1000 ppm respectivamente) y vainas de Zry-4; estas barras son las de interés en este trabajo. La instrumentación de cada barra está compuesta por un transductor para medir la presión interna, una termocupla en una pastilla anular en la zona superior para estimar la temperatura central de la pastilla, y un extensómetro que mide la elongación de la pila de pastillas. Tanto los transductores como los extensómetros fallaron después de cierto tiempo de medición en distintos momentos (Fuglesang, 2016). Por otro lado, se midió también la liberación de gas de fisión final de la barra 6 por pinchado; la medición de pinchado de la barra 1 falló debido a que los gases se escaparon durante el procedimiento (Jenssen, 2017). Las características de fabricación de la barra se muestran en la Tabla 1.

3.2. IFA 677

El experimento IFA 677 (Jošek, 2008) consta de 6 barras combustibles instrumentadas fabricadas de distintos materiales las cuales son sometidas a una historia de potencia dentro del reactor Halden. La barra 1 y la barra 5 están hechas con pastilla de UO_2 dopadas con Cr_2O_3

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

Tabla 1: Datos de fabricación de las barras 1 y 6 del experimento IFA 716 (Fuglesang, 2016)

y Al_2O_3 con distintas concentraciones y vainas de Zry-4; estas barras son las de interés en este trabajo. La instrumentación de cada barra está compuesta por un transductor para medir la presión interna, dos termocuplas en pastillas anulares en la zona superior e inferior de la barra para estimar la temperatura central de la pastilla, y un extensómetro que mide la elongación de la pila de pastillas. La medición de la liberación de gases de fisión fue calculada a partir de los datos medidos de la presión interna. Las características de fabricación de la barra se muestran en la Tabla 2.

		Barra 1	Barra 5
Dopado Cr_2O_3	[ppm]	900	500
Dopado Al_2O_3	[ppm]	200	200
Tamaño de grano	[μm]	56	45
Diámetro externo de la vaina	[mm]	10,75	10,75
Diámetro interno de la vaina	[mm]	9,30	9,30
Diámetro de la pastilla	[mm]	9,13	9,13
Largo de la pastilla	[mm]	11,0	11,0
Enriquecimiento	[w %]	4,94	4,91
Porcentaje de densidad teórica	[%]	97,5	97,6
Densidad	[g/cm ²]	10,69	10,70
Diámetro del dishing	[mm]	5	5
Profundidad del dishing	[mm]	0,3	0,3

Tabla 2: Datos de fabricación de las barras 1 y 5 del experimento IFA 677 (Jošek, 2008)

4. RESULTADOS

4.1. IFA 716

Para simular las barras del experimento IFA 716, se dividió el dominio en tres sectores y se consideró que todas las pastillas eran macizas sin agujero central. El sector más alto simuló la ubicación de la termocupla, por lo que la temperatura central obtenida en ese sector aproxima a la temperatura en la termocupla. Los resultados obtenidos se muestran en las Figuras 1 y 2.

Tanto para la barra 1 como la barra 6, la temperatura central calculada por DIONISIO re-

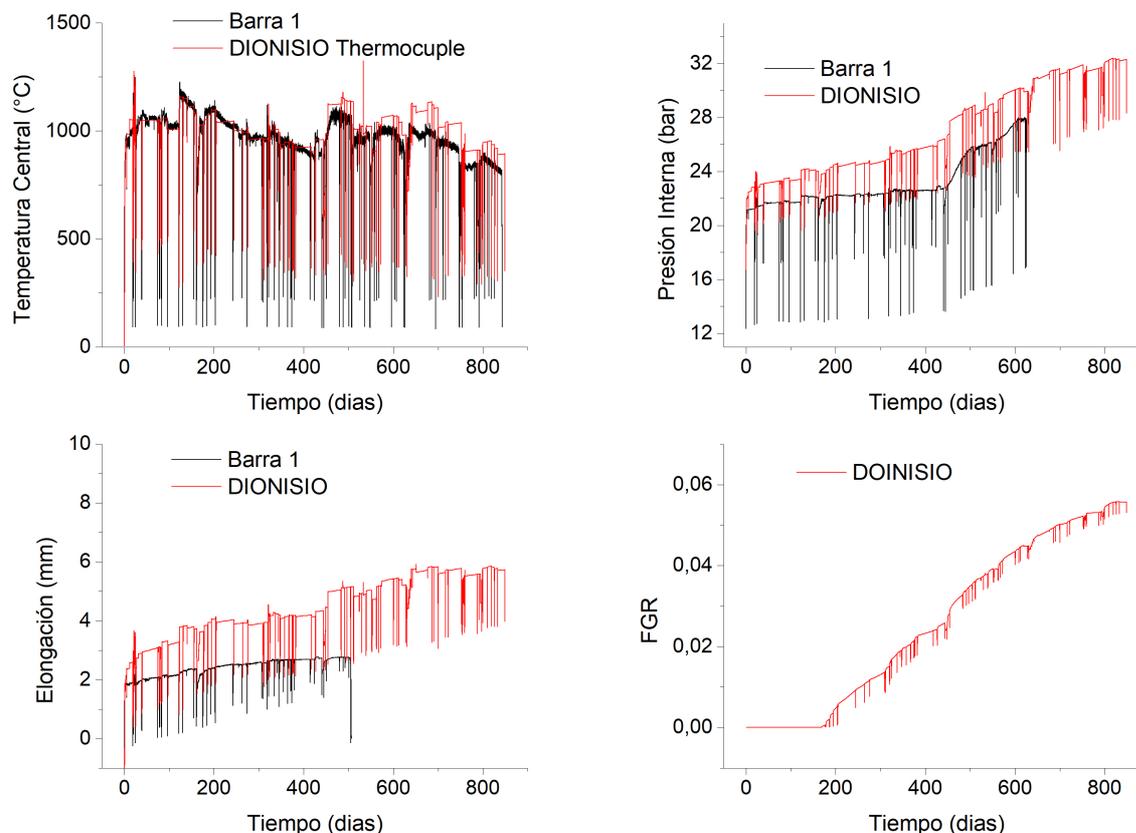


Figura 1: Resultados de la simulación de la barra 1 del experimento IFA 716

produce la temperatura medida hasta los 500 y 600 días de cada experimento respectivamente, como se observa en el gráfico superior izquierdo de cada figura. Luego se produce una sobrestimación del 10 % para la primera barra y del 15 % para la segunda. Por otro lado, la presión se sobreestimó entre un 5 % y un 15 % (gráfico superior derecho de ambas figuras). Por su parte, la elongación de la pila de pastillas fue sobrestimada en ambas barras ampliamente (gráfico inferior izquierdo). Para la barra 6 la liberación de gases de fisión se sobrestimó ligeramente, llegando a ser un resultado conservador.

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

4.2. IFA 677

Para simular las barras del experimento IFA 677, se dividió el dominio en tres sectores axiales y se consideró que todas las pastillas eran macizas sin agujero central. El sector más alto simuló la ubicación de la termocupla superior y el más bajo, la inferior. De esta forma, la temperatura central obtenida para ambos sectores aproxima la temperatura en cada termocupla. Los resultados obtenidos se muestran en la Figura 3. Para la barra 5 se puede observar que las temperaturas calculadas reproducen las temperaturas del experimento como se observa en la figura superior izquierda. Por su parte, a su derecha se observa la presión interna para ambas barras. La barra 5 es reproducida por los cálculos. Sin embargo, para la barra 1, el valor experimental

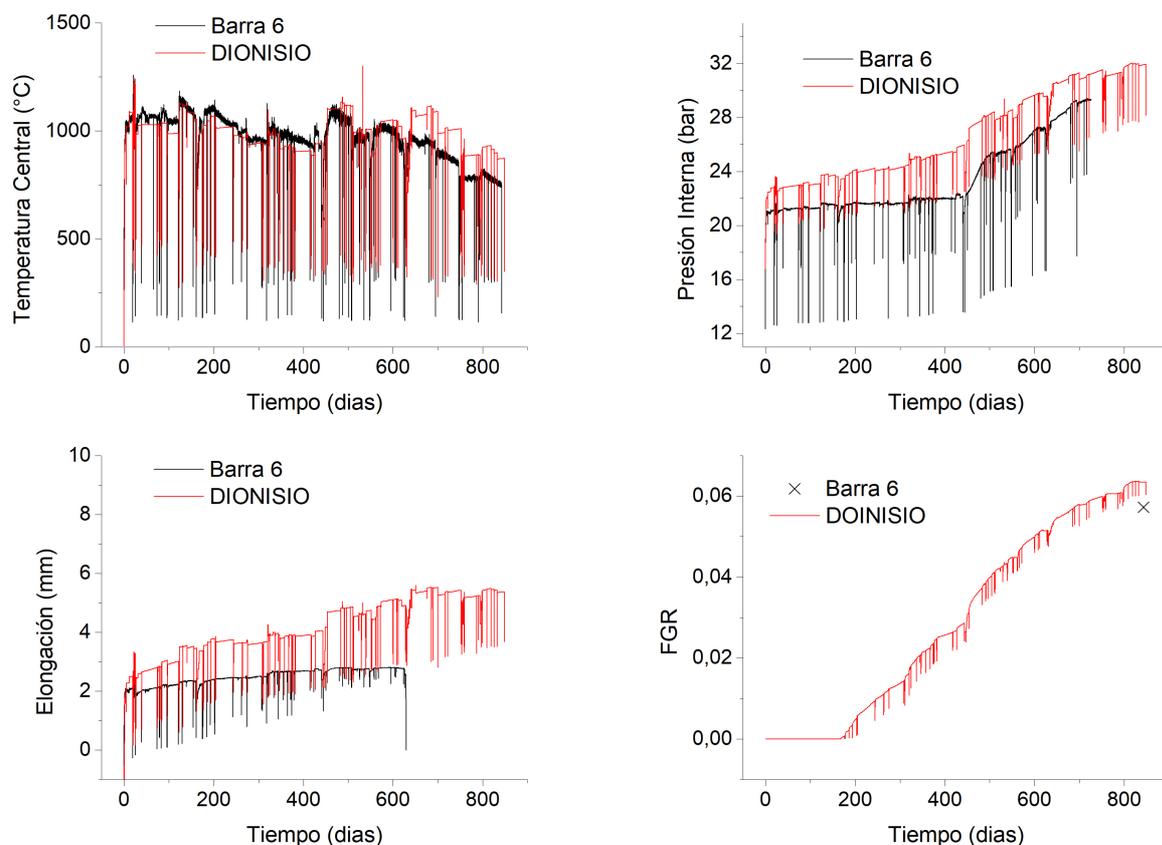


Figura 2: Resultados de la simulación de la barra 6 del experimento IFA 716

discrepa con el valor calculado por DIONISIO. Dado cierto tiempo, este valor es mayor que el valor de la barra 5, que no se condice con la concentración de dopantes que es menor en la barra 5. Entendiendo que a mayor concentración, la liberación de gases de fisión debería ser menor, suponemos una falla del dispositivo de medición. Esto se ve expresado en una liberación repentina de gases de fisión, como se ve en el gráfico inferior derecho, que permanece por debajo del valor experimental de la barra 5 hasta los 13 MWd/kgUO_2 . Finalmente, la elongación de la pila de pastillas fue prácticamente reproducida para la barra 1, a excepción de un primer aumento repentino a los primeros 100 días de irradiación. La barra 5 fue reproducida entre los 100 y los 250 días; antes de ese tiempo fue subestimada, y luego, sobrestimada.

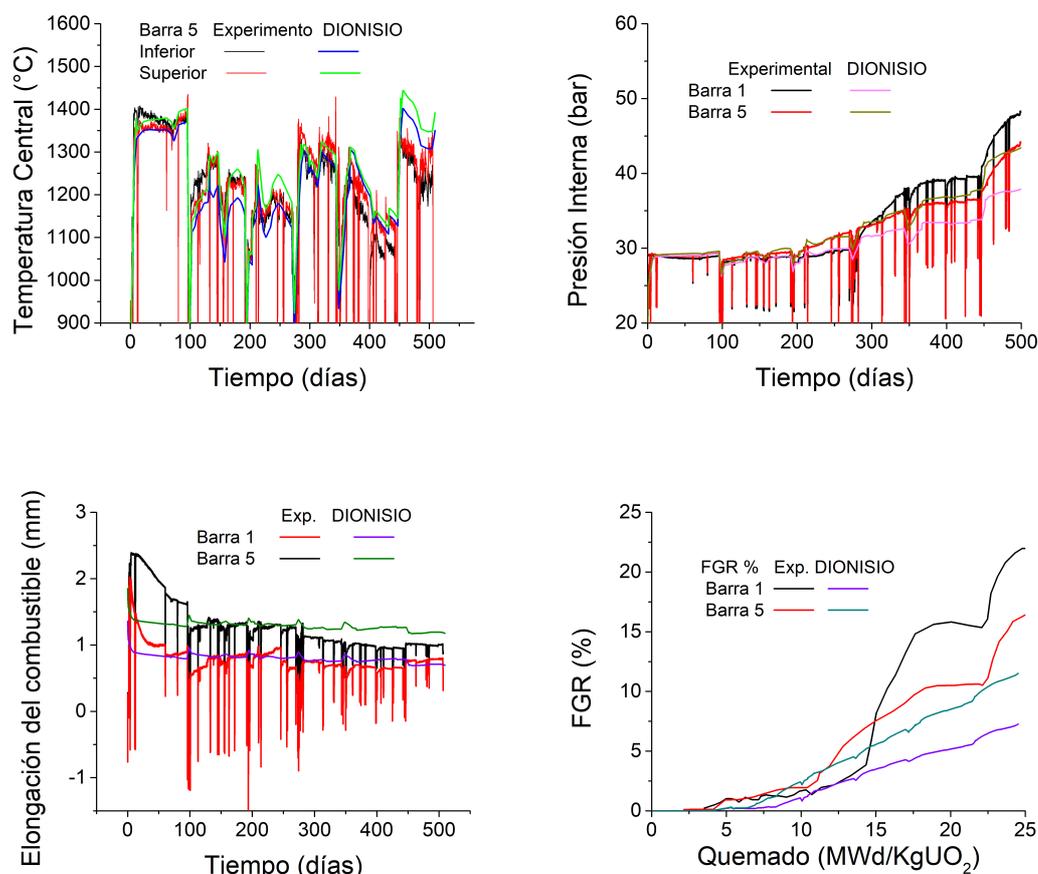


Figura 3: Resultados de la simulación del experimento IFA 677

5. CONCLUSIONES

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

REFERENCIAS

- Brémond O. IFA-716.1 Fission gas release mechanisms. Informe Técnico HWR-1008, OECD, Noruega, 2011.
- Cooper M.W., Pastore G., Che Y., Matthews C., Forslund A., Stanek C.R., Shirvan K., Tverberg T., Gamble K.A., Mays B., y Andersson D.A. Fission gas diffusion and release for Cr₂O₃-doped UO₂: From the atomic to the engineering scale. *Journal of Nuclear Materials*, 545:152590, 2021. ISSN 0022-3115. doi:10.1016/j.jnucmat.2020.152590.

- Denis A. y Piotrkowski R. Simulation of isothermal fission gas release. *Journal of Nuclear Materials*, 229:149–154, 1996. ISSN 0022-3115. doi:10.1016/0022-3115(95)00203-0.
- Fuglesang K. In-pile results from the fission gas release mechanisms study in IFA-716 after final unloading HWR-1161. Informe Técnico HWR-1161, PECD, Noruega, 2016.
- González M.E., Soba A., y Denis A. Avances alcanzados en el modelo de liberación de gases de fisión en el código dionisio: Comportamiento en rampas de potencia. *Mecánica Computacional*, 34(25):1737–1751, 2016. Number: 25.
- Jenssen H.K. Post irradiation examination (PIE) on the six test rods from the FGR test IFA-716. Informe Técnico HWR-1155, OECD, Noruega, 2017.
- Jošek R. The high initial rating test IFA-677.1: Final report on in-pile results. Informe Técnico HWR-872, OECD, Noruega, 2008.
- Loza Peralta M.E., Gonzalez M.E., Villarino E., Bea E.A., y Soba A. Thorium cycle models into dionisio code: species, thermomechanical behaviour and fission gas release. *Journal of Nuclear Materials*, 557:153279, 2021.
- Loza Peralta M.E., Lemes Lapasta M.L., Bea E.A., y Soba A. Modelado de Materiales para Combustibles Tecnología Avanzada. *Mecánica Computacional*, 39(32):1131–1140, 2022. Number: 32.
- Lösönen P. Modelling intragranular fission gas release in irradiation of sintered LWR UO₂ fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 304(1):29–49, 2002. ISSN 0022-3115. doi:10.1016/S0022-3115(02)00856-5.
- Maldován M., Denis A., y Piotrkowski R. Simulation of isothermal fission gas release: An analytical solution. *Nuclear Engineering and Design*, 187(3):327–337, 1999. ISSN 0029-5493. doi:10.1016/S0029-5493(98)00299-4.
- OIEA. *Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels (ATF-TS)*, volumen I. <https://www.iaea.org/projects/crp/t12032>, 2018.
- OIEA. Fuel Modelling in Accident Conditions (FUMAC). Text IAEA-TECDOC-1889, International Atomic Energy Agency, Viena, 2019.
- OIEA. Analysis of options and experimental examination of fuel for water cooled reactors with increased accident tolerance. Informe Técnico IAEA-TECDOC-1921, International Atomic Energy Agency (IAEA), 2020.
- Pasamehmetoglu K. *State-of-the-Art Report on Light Water Reactor Accident-Tolerant Fuels*, volumen I. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2018.
- Turnbull J.A., White R.J., y Wise C. The diffusion coefficient for fission gas atoms in uranium dioxide. 1989. Number: IWGFPT–32.