

Simulación de pastillas de UO_2 dopadas con Cr_2O_3 para combustibles nucleares de tecnología avanzada

Simulation of Cr_2O_3 -doped UO_2 pellets for advance technology nuclear fuels

Presentación: 05/10/2023

Matias Ezequiel Loza Peralta

Comisión Nacional de Energía Atómica. Gerencia Combustibles Nucleares. Sección Códigos y Modelos
Comisión Nacional de Energía Atómica. Instituto Sábató
loza@cnea.gov.ar

Martín Rodolfo Lemes Lapasta

Comisión Nacional de Energía Atómica. Gerencia Combustibles Nucleares. Sección Códigos y Modelos
lemes@cnea.gov.ar

Alejandro Soba

Comisión Nacional de Energía Atómica. Gerencia Combustibles Nucleares. Sección Códigos y Modelos
CONICET
soba@cnea.gov.ar

Resumen

Desde el accidente de Fukushima, se realizaron esfuerzos internacionales para aumentar la seguridad de los reactores de potencia buscando extender los tiempos en los que se pueden accionar los sistemas de emergencia ante un accidente. Esto se puede lograr seleccionando materiales para combustibles nucleares que cumplan estos requisitos, surgiendo así los combustibles de tecnología avanzada (ATF, por sus siglas en inglés). Dentro del proyecto ATF-TS del OIEA, la Sección Códigos y Modelos participa con el código DIONISIO en los esfuerzos por modelar el comportamiento de tales combustibles. Este trabajo expone los avances alcanzados en la inclusión de modelos para pastillas de UO_2 dopadas con Cr_2O_3 y su validación con datos experimentales provistos por el proyecto ATF-TS.

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

Abstract

Since the Fukushima accident, international efforts have been made to increase the safety of power reactors by seeking to extend the times in which emergency systems can be activated in the event of an accident. This can be achieved by selecting nuclear fuel materials that meet these requirements, thus emerging advanced technology fuels (ATF). Within the IAEA ATF-TS project, the Codes and Models Section participates with the DIONISIO code in efforts to model the behavior of such fuels. This work exposes the progress made in the inclusion of models for Cr_2O_3 doped UO_2 pellets and their validation with experimental data provided by the ATF-TS project.

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

Introducción

El sector nuclear compuesto tanto por la industria como por los organismos internacionales han estado trabajando en las últimas décadas en el diseño de nuevos reactores nucleares de potencia y de sus componentes, como los combustibles nucleares, para aumentar su eficiencia y seguridad. Para el diseño de los combustibles de estos nuevos reactores de IV generación, se buscan materiales que mantengan la integridad por un mayor tiempo ante un evento de accidente dando lugar a que los sistemas de seguridad del núcleo tengan mayor margen para activarse (Pasamehmetoglu et al., 2018). A estos nuevos combustibles que mejoran las propiedades de los que se usan actualmente en la industria nuclear y que al mismo tiempo mantienen o mejoran el rendimiento en condiciones normales de operación se los denominan como ATF (*Advanced Technology Fuels*) (Zinkle et al., 2014).

En este marco, se están desarrollando a nivel internacional herramientas de simulación de rendimiento de combustibles que contengan estos nuevos materiales. Para coordinar algunos de dichos esfuerzos surgió el proyecto 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 investiga los principales factores que influyen en el diseño, la fabricación y el comportamiento de los combustibles candidatos a ser ATF para aumentar su disponibilidad tecnológica.

La Sección Códigos y Modelos trabaja en la inclusión del modelado de las propiedades de estos nuevos combustibles dentro del código DIONISIO, un código dedicado a simular el comportamiento de barras combustibles en reactores bajo irradiación. Para esto, se ha propuesto genera una librería de modelos materiales tanto para vainas (Loza Peralta et al., 2022) como para pastillas (Loza Peralta et al., 2021) que se incluyan en los llamados ATF. Particularmente, en este trabajo se presentan los avances realizados para pastillas de UO₂ dopado con Cr₂O₃.

El dopado de pastillas con alrededor de 1000 ppm de Cr₂O₃ busca aumentar el tamaño de grano del material generando dos efectos importantes para el rendimiento del combustible en condiciones normales de operación y de accidente (Pasamehmetoglu et al., 2018). Por un lado, reduce la resistencia mecánica de la pastilla minimizando la interacción mecánica entre la pastilla y la vaina (PCMI, por sus siglas en inglés). Por otro lado, aumenta la retención de los gases de fisión dentro de la pastilla evitando que se libere al volumen libre de la barra combustible. Esto se debe a que para que el gas llegue al volumen libre, primero debe llegar al borde de grano del material y si aumentamos el tamaño de grano, el camino que tiene que recorrer por difusión el gas disuelto es mayor. Este fenómeno compite con el aumento del coeficiente de difusión debido también al dopado, pero termina siendo más importante el aumento del tamaño de grano (Cooper et al., 2021).

Para simular estos fenómenos, se modificó el modelo de liberación de gases de fisión ya presente en DIONISIO para el nuevo material y se contrastarán los resultados con experimentos provistos por la OIEA dentro del marco del proyecto ATF-TS en el cual participa DIONISIO.

Modelo de Liberación de Gases de Fisión

Modelo original de DIONISIO

DIONISIO cuenta con un modelo de liberación de gases de fisión que primero resuelve la ecuación de difusión de dichos gases para un grano esférico en cada paso de tiempo de la operación del reactor (González et al., 2016). Para desarrollarlo es importante tener en cuenta que el gas poco soluble en la matriz forma burbujas intragranulares que actúan como trampas del mismo en sitios preferenciales de la red cristalina. Las burbujas pueden re-disolverse por la acción de fragmentos de fisión de alta energía que impactan en ellas. De esta manera, se genera un equilibrio dinámico entre la captura y la liberación de átomos de gas que tiende hacia la formación de burbujas intergranulares

por acción de la difusión. Una vez que esas burbujas se saturan de gas pueden interconectarse con otras burbujas y liberarse en el borde del combustible quedando en el volumen libre de la barra (González et al., 2016).

De esta manera, el modelo inicia calculando la concentración de gases de fisión a lo largo de un grano esférico por elementos finitos:

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

donde ψ es la concentración total de átomos de gas (disueltos y atrapados) en la matriz [at/m^3], 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 [m^2/s] y β la tasa de generación de átomos de gas producidos por evento de fisión [$at/m^3 \cdot s$]. Las condiciones de contorno se aplican en el centro del grano con simetría esférica ($\frac{\partial \psi}{\partial r}(r=0) = 0$) y en el borde de grano considerándolo como sumidero perfecto ($\psi(r=a) = 0$). Para resolver esta ecuación se debe calcular el coeficiente de difusión efectiva 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 [m^2/s] que contiene tres contribuciones. Para altas temperaturas, gobierna el mecanismo de vacancias catiónicas térmicamente activadas (Denis & 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 [$cal/mol \cdot K$] y T la temperatura [K]. Para temperaturas entre 600 y 1400 °C, gobierna el mecanismo regulado por las vacancias e intersticiales producidas por la irradiación (Denis & 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 [m], Ω es el volumen atómico [m^3], $j_V = 10^{13} \cdot C_V^0$ es la frecuencia de salto de vacancias [s^{-1}], $C_V^0 = \exp\left(-\frac{55200}{RT}\right)$ y C_V es la fracción de sitios de vacancias. Para temperaturas menores a 600 °C, gobiernan los mecanismos atérmicos de *recoil* y *knock out* (Denis & Piotrkowski, 1996; Lösönen, 2002; Maldován et al., 1999). Siendo F la tasa de fisiones [$m^{-3}s^{-1}$], el tercer término queda expresado de la siguiente manera:

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

Sumando las tres contribuciones obtenemos el modelo propuesto por (Turnbull et al., 1989):

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

Otros detalles del modelo se pueden encontrar en (González et al., 2016).

Adaptación del modelo para combustibles dopados

Para modelar la liberación de gases de fisión para el combustible dopado, es necesario cambiar el tamaño de grano inicial del combustible que se cambia por los parámetros de entrada del código y modificar el modelo del coeficiente de difusión. Para realizar esto último, existen estudios a primeros principios en la bibliografía (Cooper

et al., 2021) agregar un factor exponencial a cada uno de los dos primeros de la difusividad original de DIONISIO. Por su parte, el tercer término se mantiene igual porque no depende de la temperatura sino de la tasa de fisiones. De esta manera, la difusividad queda expresada como:

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

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

Validación

Para validar los modelos se contrastó con el experimento IFA 716 (Brémond, 2011) propuesto por el proyecto ATF-TS. El mismo consta de 6 barras combustibles instrumentadas fabricadas con pastillas de distintos materiales, las cuales son sometidas a una historia de potencia en el reactor Halden. Las vainas en todos los casos fueron de ZIRCALOY-4. Las barras de interés de este experimento son las barras 1 y 6 que están hechas de UO₂ dopado con Cr₂O₃ con distintas concentraciones (1600 ppm y 1000 ppm respectivamente). Otras características de fabricación se pueden observar en la Tabla 1. Las pastillas superiores de todas las barras son anulares con un agujero en el centro para poder medir la temperatura con una termocupla. Además cada barra contó con un transductor para medir la presión interna y un extensómetro para medir la elongación de la pila de pastillas. Tanto los transductores como los extensómetros fallaron a partir de un tiempo de medición dado (Fuglesang, 2016). Se hicieron también ensayos post-irradiación para la barra 6 para medir la liberación de gases de fisión mediante pinchado; la medición de la barra 1 falló por fugas de gas durante el procedimiento (Jensen, 2017).

Datos	Barra 1	Barra 6
Dopado [ppm]	1600	1000
Tamaño de grano [μm]	70	59
Longitud activa del combustible [mm]	399,5	399,3
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 [p%]	4,90	4,89
Porcentaje de densidad teórica [%]	96,0	96,2
Densidad [g/cm ³]	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)

Las simulaciones se realizaron dividiendo la barra en 3 sectores, tomando el sector superior como el sector donde se ubica la termocupla pero simulando una barra maciza y no agujereada. Además, los valores de los tamaños de grano inicial se asignaron en los inputs de la ejecución. Los resultados obtenidos se pueden visualizar en las Figuras 1 y 2.

Las temperaturas calculadas en las barras 1 y 6 -que se observan en los gráficos superiores izquierdos de cada figura- reproducen los valores experimentales hasta los 500 y 600 días aproximadamente de cada experimento respectivamente. Luego de esos tiempos se sobreestima por 10 y 15% en cada barra. A la derecha del gráfico de la temperatura se observa que la presión fue sobrestimada entre un 5 y un 15% para ambas barras. La elongación (gráficos inferiores izquierdos) fue sobreestimada en ambas barras ampliamente. Para la barra 6 la liberación de gases de fisión se sobreestimó ligeramente, llegando a ser un resultado conservador.

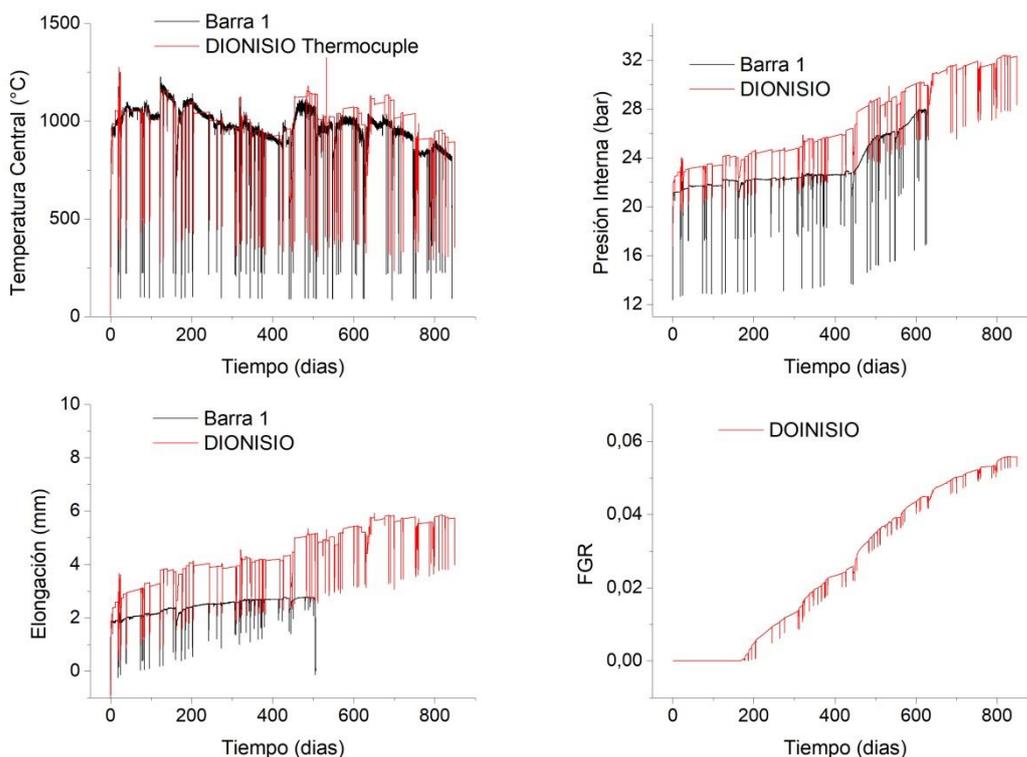


Figura 1: Resultados de la simulación de la barra 1 del experimento IFA 716

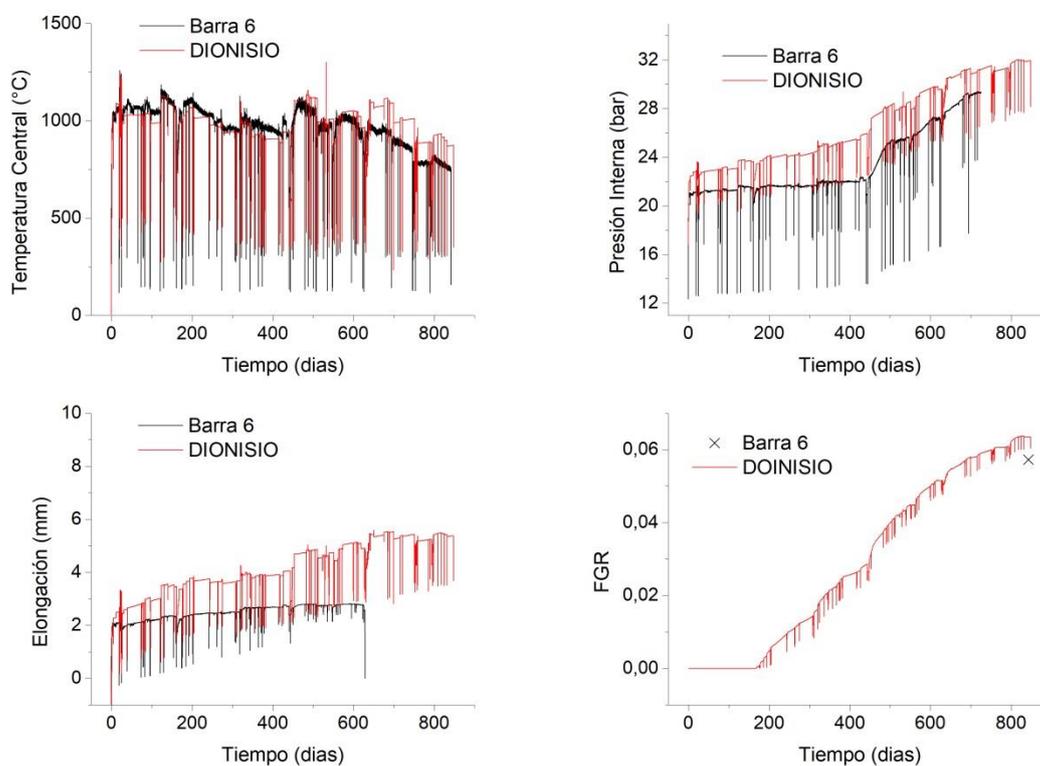


Figura 2: Resultados de la simulación de la barra 6 del experimento IFA 716

Conclusiones

En el marco de la inclusión de una librería de modelos materiales para combustibles ATF, se ha incluido en el código DIONISIO un modelo para la liberación de gases de fisión para óxidos combustibles dopados con Cromo. Se contrastó el modelo contra diversos experimentos proporcionados por la OIEA. En particular para el experimento IFA 716, se observaron que las predicciones difieren de las mediciones experimentales hasta un máximo de 15%. Teniendo en cuenta la incerteza de las medidas de experimentos tan complejos y la multiplicidad de parámetros de los modelos presentes, los resultados predicen los comportamientos de manera aceptable.

Referencias

- Brémond, O. (2011). *IFA-716.1 Fission gas release mechanisms* (HWR-1008; OECD HALDEN REACTOR PROJECT, p. 36). OECD.
- Cooper, M. W., Pastore, G., Che, Y., Matthews, C., Forslund, A., Stanek, C. R., Shirvan, K., Tverberg, T., Gamble, K. A., Mays, B., & Andersson, D. A. (2021). Fission gas diffusion and release for Cr2O3-doped UO2: From the atomic to the engineering scale. *Journal of Nuclear Materials*, *545*, 152590. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2020.152590>
- Denis, A., & Piotrkowski, R. (1996). Simulation of isothermal fission gas release. *Journal of Nuclear Materials*, *229*, 149-154. [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(95\)00203-0](https://doi.org/10.1016/0022-3115(95)00203-0)
- Fuglesang, K. (2016). *In-pile results from the fission gas release mechanisms study in IFA-716 after final unloading HWR-1161* (HWR-1161; OECD HALDEN REACTOR PROJECT, p. 44). PECD.
- González, M. E., Soba, A., & Denis, A. (2016). Avances Alcanzados en el Modelo de Liberación de Gases de Fisión en el Código DIONISIO: Comportamiento en Rampas de Potencia. *Mecánica Computacional*, *34*(25), Article 25.
- Jensen, H. K. (2017). *Post irradiation examination (PIE) on the six test rods from the FGR test IFA-716*. (HWR-1155; OECD HALDEN REACTOR PROJECT, p. 72). OECD.
- Lösönen, P. (2002). Modelling intragranular fission gas release in irradiation of sintered LWR UO2 fuel. *Journal of Nuclear Materials*, *304*(1), 29-49. [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(02\)00856-5](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(02)00856-5)
- Loza Peralta, M. E., Gonzalez, M. E., Villarino, E., Bea, E. A., & Soba, A. (2021). Thorium cycle models into DIONISIO code: Species, thermomechanical behaviour and fission gas release. *Journal of Nuclear Materials*, 153279. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2021.153279>
- Loza Peralta, M. E., Lemes Lapasta, M. L., Bea, E. A., & Soba, A. (2022). Modelado de Materiales para Combustibles Tecnología Avanzada. *Mecánica Computacional*, *39*(32), Article 32.
- Maldován, M., Denis, A., & Piotrkowski, R. (1999). Simulation of isothermal fission gas release: An analytical solution. *Nuclear Engineering and Design*, *187*(3), 327-337. [https://doi.org/10.1016/S0029-5493\(98\)00299-4](https://doi.org/10.1016/S0029-5493(98)00299-4)
- OIEA. (2018, diciembre 18). *Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels (ATF-TS)* [Text]. IAEA. <https://www.iaea.org/projects/crp/t12032>
- OIEA. (2019). Fuel Modelling in Accident Conditions (FUMAC). En *Fuel Modelling in Accident Conditions (FUMAC)* (Text IAEA-TECDOC-1889; IAEA TECDOC SERIES, pp. 1-180). International Atomic Energy Agency. <https://www.iaea.org/publications/13604/fuel-modelling-in-accident-conditions-fumac>
- OIEA. (2020). *Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance (ACTOF)* (IAEA-TECDOC-1921; IAEA TECDOC SERIES, pp. 1-180). International Atomic Energy Agency. <https://www.iaea.org/publications/14691/analysis-of-options-and-experimental-examination-of-fuels-for-water-cooled-reactors-with-increased-accident-tolerance-actof>

Pasamehmetoglu, K., Massara, S., Costa, D., Bragg-Sitton, S., Moatti, M., Kurata, M., Iracane, D., Ivanova, T., Bischoff, J., Delafoy, C., Brachet, J. C., Chauvin, J. P., Coulon-Picard, E., Forgeron, T., Gonnier, C., Lorrette, C., Bragg-Sitton, S. M., Cheng, B., Csontos, A., ... Zvonarev, Y. (2018). *State-of-the-Art Report on Light Water Reactor Accident-Tolerant Fuels* (p. 372).

Turnbull, J. A., White, R. J., & Wise, C. (1989). *The diffusion coefficient for fission gas atoms in uranium dioxide* (IWGFPT--32). Article IWGFPT--32. http://inis.iaea.org/Search/search.aspx?orig_q=RN:21003206

Zinkle, S. J., Terrani, K. A., Gehin, J. C., Ott, L. J., & Snead, L. L. (2014). Accident tolerant fuels for LWRs: A perspective. *Journal of Nuclear Materials*, 448(1), 374-379. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.12.005>