

Variación de densidad de pastillas combustibles bajo irradiación

Mauricio E. Cazado*^{1,2}, Alejandro Soba^{2,3}, Alicia Denis³

(1) Instituto de Tecnología Jorge A. Sabato, UNSAM-CNEA, Buenos Aires, Argentina.

(2) Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas, Argentina.

(3) Sección Códigos y Modelos, Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear, Comisión Nacional de Energía Atómica, Buenos Aires, Argentina.

* e-mail: cazado@cnea.gov.ar

RESUMEN

En este trabajo se presentan los aspectos generales de un modelo desarrollado para predecir los cambios en la porosidad de las pastillas combustibles, debido a los efectos térmicos y de la irradiación (densificación). El modelo tiene en cuenta el flujo de defectos puntuales desde y hacia los poros. Asimismo, permite simular ensayos de caracterización de combustibles sin irradiación. Se analizó el comportamiento del modelo al comparar sus resultados con medidas experimentales disponibles en la literatura abierta, encontrándose un acuerdo satisfactorio. El modelo de densificación fue incluido en el código de combustible DIONISIO, con el que se realizaron simulaciones de recocidos térmicos y experimentos bajo irradiación, alcanzando un buen acuerdo entre los resultados provistos por el cálculo numérico y los datos experimentales.

Palabras clave: Microestructura; Combustible nuclear; Densificación; Defectos puntuales; DIONISIO.

ABSTRACT

In this work, the general aspects of a model developed to predict changes in the porosity of fuel pellets (densification) due to thermal and irradiation effects are presented. The model takes into account the flow of point defects to and from the pores. Likewise, it allows simulating fuel characterization tests without irradiation. The behavior of the model was analyzed by comparing its results with experimental measures available in the open literature, finding a satisfactory agreement. The densification model was included in the DIONISIO fuel code, with which thermal annealing simulations and experiments under irradiation were carried out, reaching a good agreement between the results provided by the numerical calculation and the experimental data.

Keywords: Microstructure; Nuclear fuel; Densification; Point defects; DIONISIO.

INTRODUCCIÓN

Cuando un elemento combustible es sometido a irradiación, diversas propiedades de los materiales sufren modificaciones, pero muchos de los parámetros involucrados no pueden medirse con exactitud debido a la inaccesibilidad de los mismos. Por otro lado, los experimentos bajo estas condiciones suelen involucrar tiempos prolongados y equipamiento sofisticado, lo que los hace sumamente costosos. Bajo estas condiciones, el uso de códigos de cálculos para la predicción del comportamiento de los combustibles nucleares resulta una herramienta útil y de enorme valor ya que permite simular ciertos procesos de forma segura y económica. Asimismo, los resultados obtenidos suelen formar parte de los ajustes y mejoras en el diseño del combustible u otros componentes de un reactor, dejando reservados los experimentos para la etapa de verificación final del proyecto. Existen diversos códigos de comportamiento de combustibles nucleares desarrollados en distintos países y con diferentes objetivos. En Argentina, uno de ellos es DIONISIO, que fue diseñado y construido en la Sección Códigos y Modelos de la Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear de la Comisión Nacional de Energía Atómica (GCCN – CNEA).

DIONISIO es un código multidimensional que está constituido por una batería de modelos acoplados entre sí, con el objetivo de simular el comportamiento de combustibles nucleares bajo irradiación dentro de un reactor de potencia o de investigación [1–5]. La capacidad de predicción de un código se ve acotada a unas determinadas condiciones dadas por la calidad y diversidad de los modelos que posee. Por eso mismo y para ampliar dichas capacidades, los modelos incluidos en el código suelen ser sometidos a revisiones. El objetivo de este trabajo fue analizar el fenómeno de densificación de una pastilla combustible, generar un modelo mejorado de dicho fenómeno y desarrollar un algoritmo numérico acorde que amplíen el rango de predicción del código DIONISIO. A continuación, se describen los aspectos generales del modelo de densificación de pastillas combustibles desarrollado [6] y sus resultados más relevante.

DESCRIPCIÓN GENERAL DEL MODELO DE DENSIFICACIÓN

El fenómeno de densificación de una pastilla de combustible es consecuencia de la contracción de los poros de fabricación. Este efecto resulta importante a bajos quemados, entre 2 y 3 MWd/kgU [7], mientras que, para quemados medios y altos se contrarresta con el hinchamiento o swelling, resultante de la acumulación de productos de fisión sólidos y gaseosos. Diferentes datos experimentales muestran que la densificación ocurre a distintas velocidades para diferentes diámetros de poros [8,9], por lo que contar con una descripción correcta de la distribución de poros y su evolución permite simular los cambios dimensionales en la pastilla de manera más realista y obtener una predicción más precisa de la conductividad térmica del combustible, ya que la presencia de poros en la red representa un obstáculo para el transporte térmico.

Durante la fabricación de las pastillas combustibles, el polvo de UO_2 se sinteriza a elevadas temperaturas (alrededor de 1973 K), lo que da como resultado un material con una densidad entre 90 y 97% de la densidad teórica (TD) del UO_2 . Los poros de fabricación pueden ubicarse tanto dentro de los granos (poros intragranulares) como en los bordes de grano (poros intergranulares). Según, Tarasov y Veshchunov [10], la distribución inicial de poros ($t = 0$) de un combustible puede caracterizarse a partir de la siguiente función de distribución de concentración de poros $n_p(r_p)$:

$$n_p(r_p) = \begin{cases} 0 & r_p < R_c \\ \frac{n_0 r_p^s}{s! R_0^{s+1}} e^{-r_p/R_0}, & r_p \geq R_c \end{cases} \quad s = 0, 1, 2, \dots \quad (1)$$

donde r_p es el radio del poro, n_0 es la concentración inicial total de poros, R_0 y s son parámetros de ajuste de la distribución y R_c es el radio de poro mínimo que el método experimental de detección puede resolver. A partir de (1), la función de distribución de porosidad, es decir la fracción en volumen de poros con un radio en un intervalo $(r_p, r_p + dr_p)$ se calcula utilizando la siguiente expresión:

$$p(r_p) = n_p(r_p) \cdot V_p(r_p) \quad (2)$$

donde V_p es el volumen de un poro con radio en el intervalo mencionado. La ec. (1) corresponde a una distribución de porosidad monomodal. Para contemplar los casos de distribuciones bimodales y trimodales, se propone la superposición de dos o tres distribuciones monomodales, respectivamente.

El modelo que describe la porosidad inicial de un combustible se basa en las siguientes consideraciones principales:

- Los poros intragranulares se consideran esféricos con un radio definitivamente menor que el del grano (R_g). En este trabajo se propone que r_p (intragranular) $< 0,2 R_g$.
- Los poros intergranulares se suponen con forma lenticular como resultado de la intersección entre dos casquetes esféricos del mismo radio de curvatura ρ , formando un ángulo diedro $\theta = 50^\circ$, de modo tal que en el plano del borde de grano se tiene un radio de poro proyectado $r = \rho \cdot \sin\theta$ [11]. Los poros ubicados en los bordes de grano pueden presentarse en cualquier tamaño.
- El volumen para ambos tipos de poros está dado por $V_p(r_p) = 4/3 \cdot \pi \cdot r_p^3 \cdot f_v$, donde:

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

- Para caracterizar las distribuciones se emplean momentos de tercer orden, ya que de esta manera se tiene en cuenta el volumen ocupado por cada tamaño de poro presente en una muestra determinada:

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

$$\int_0^{r_{medv}} V_p(r_p) n_p(r_p) dr_p = \frac{1}{2} \int_0^\infty V_p(r_p) n_p(r_p) dr_p \quad (5)$$

donde r_{mv} y r_{medv} son el promedio y la mediana en volumen del radio de poros, respectivamente.

- El tratamiento de los datos experimentales se vuelve más simple si los poros se agrupan en clases definidas por intervalos. En un trabajo por Ozrin y Tarasov [12] se propone la siguiente ley para identificar las clases de los poros, que se adopta en este trabajo:

$$r_j = R_0 10^{j/10} \quad j = 1, 2, \dots, n \quad (6)$$

donde j indica el número de la clase de poro evaluada.

A partir de los datos experimentales sobre porosidad en pastillas de UO_2 informados por Assmann y Manzel [13], se ajustó el parámetro s de la distribución dado en (1), encontrando que el mejor acuerdo se consigue con $s = 0$. Este parámetro se utilizó en todos los cálculos realizados posteriormente

En la figura 1 se puede observar la comparación entre la distribución de porosidad inicial medida por Assmann y Manzel [13] y la calculada con el modelo descrito en este trabajo. En A) se muestra la porosidad en función de las clases de poros, mientras que en B), la porosidad acumulada. En ambos casos, las líneas llenas corresponden a interpolaciones suaves de los resultados obtenidos por el cálculo numérico. Se puede observar un muy buen acuerdo entre la simulación y los valores medidos de la porosidad acumulada.

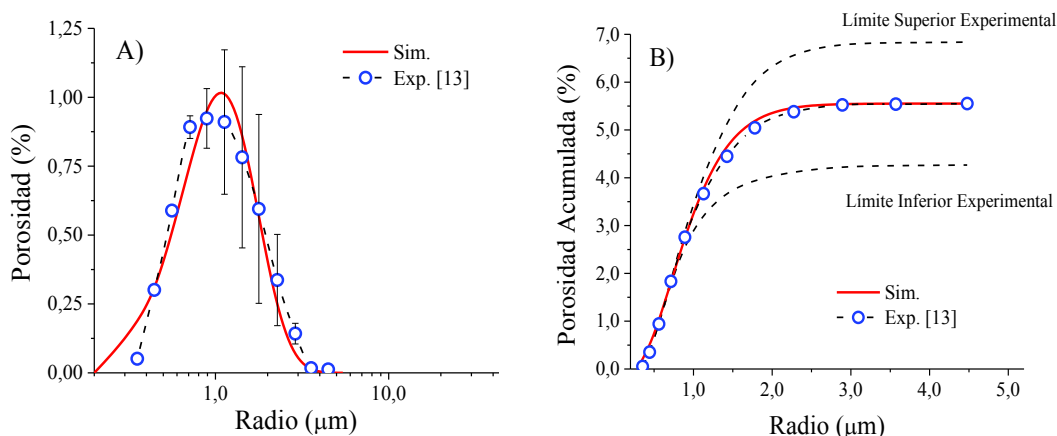


Figura 1. Simulación de A) porosidad y B) porosidad acumulada de una distribución monomodal y su comparación con datos experimentales [13].

El proceso de densificación, producido por la contracción de los poros de fabricación, puede explicarse a partir de la migración de defectos puntuales, vacancias e intersticiales, a través de la red del óxido de uranio. Los defectos puntuales pueden tener un origen térmico o ser generados por irradiación, y pueden ser capturados por poros, así como por otros defectos presentes en la red, como las dislocaciones y los bordes de grano. Las vacancias e intersticiales también pueden sufrir una recombinación mutua. El modelo desarrollado [6] supone que la evolución del tamaño de los poros está controlada por el flujo neto de vacancias e intersticiales desde y hacia las diferentes fuentes y sumideros. La competencia entre estos mecanismos conduce a la contracción de los poros y, por lo tanto, a la densificación del material, al menos durante las primeras instancias del proceso hasta que se alcanza una condición de saturación. Si además de elevadas temperaturas, el proceso se desarrolla bajo irradiación, el efecto del hinchamiento, contrarresta y finalmente supera al de densificación.

Las hipótesis en las que se basa el modelo de densificación, que se indican a continuación, tienen en cuenta los efectos combinados de la temperatura y la irradiación. Para aquellos casos en que se pretenda analizar solo el efecto de la temperatura, simplemente se suprimen las contribuciones de la irradiación:

- Cada fisión del ^{235}U da lugar a nuevos neutrones y dos fragmentos de fisión (spikes). Cada fragmento de fisión pierde su energía en sucesivos choques con los átomos de la red, lo que desencadena una cascada de daño. Los desplazamientos atómicos dan origen a diferentes tipos de defectos, en particular vacancias e intersticiales. Dichos defectos puntuales tienen una alta probabilidad de recombinación, pero se estima que el 10% de ellos puede escapar de la cascada y migrar a través de la red cristalina para luego alcanzar distintos sumideros [14, 15].
- Las dislocaciones, bordes de granos y superficies de los poros pueden emitir vacancias, pero no intersticiales.
- Se considera que los defectos puntuales consisten en un átomo de U (catión) y dos átomos de O (anión), satisfaciendo así la estequiometría del cristal.
- A lo largo de su trayectoria, un fragmento de fisión tiene cierta probabilidad de atravesar un poro o pasar muy cerca de él, provocando la emisión de vacancias desde el poro [15].

- El trepado de las dislocaciones se debe a los intercambios de defectos puntuales con la red cristalina.
- Bajo condiciones estrictamente térmicas, la concentración de intersticiales es mucho menor que la de vacancias, por lo que se desprecia el efecto de los primeros sin introducir un error significativo.

Los procesos descritos previamente están gobernados por la autodifusión, en volumen y en borde de grano, de los defectos puntuales en UO_2 . En la literatura abierta, se puede encontrar una cantidad considerable de datos experimentales sobre autodifusión en UO_2 , pero los valores muestran una gran dispersión que obedece a diferentes razones: los métodos empleados tienen rangos de precisión no comparables, las muestras tienen microestructuras diferentes (mono- o policristalinas) o tienen distintos grados de porosidad y/o distribuciones de poros [16–19].

Los coeficientes de autodifusión en volumen (D_U) y en borde de granos ($D_{U_{gb}}$) se ajustaron a partir de un subconjunto de datos experimentales reportados por Brite et al. [20], en los cuales se midió la densificación alcanzada después de recocidos isotérmicos en muestras de UO_2 con una distribución inicial de porosidad bien detallada:

$$D_U = 4.3 \times 10^{-8} \exp\left(-\frac{3.79[\text{eV}]}{kT}\right) \text{ (m}^2/\text{s)} \quad (7)$$

$$D_{U_{gb}} = \begin{cases} \frac{1}{w} 3.07 \times 10^{-15} \exp\left(-\frac{3.05[\text{eV}]}{kT}\right) & T < 1973 \text{ K} \\ \frac{1}{w} 5.19 \times 10^{-11} \exp\left(-\frac{2.03[\text{eV}]}{kT}\right) & T \geq 1973 \text{ K} \end{cases} \text{ (m}^2/\text{s)} \quad (8)$$

donde k es la constante de Boltzmann, T es la temperatura absoluta y w es el ancho del borde de grano, tomado en este trabajo igual a $1,0 \times 10^{-9}$ m.

Además, cuando el UO_2 se somete a irradiación, los mecanismos de difusión se aceleran. En un estudio realizado por Höh y Matzke [21] se establece que la importancia de este fenómeno en materiales fisiles, como el UO_2 , se debe al aumento de defectos y a que las altas energías liberadas por fisión dan lugar a un aumento local de temperatura, acelerando la cinética de los átomos. A partir de las medidas experimentales obtenidas por estos autores, el coeficiente de autodifusión en volumen se evalúa como la superposición del efecto térmico, que domina a temperaturas superiores a 1473 K, y un efecto balístico que depende linealmente de la tasa de fisión:

$$D_U = 1.2 \times 10^{-39} \dot{F} + 4.3 \times 10^{-8} \exp\left(-\frac{3.79[\text{eV}]}{kT}\right) \text{ (m}^2/\text{s)} \quad (9)$$

donde \dot{F} es la tasa de fisión medida en (fisiones/ m^3s).

La concentración de vacancias (C_v) e intersticiales (C_i) se obtiene por medio del balance entre la generación y captura de defectos puntuales en la red cristalina. Esto puede esquematizarse como sigue:

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = \begin{cases} \text{generación de vacancias por irradiación} \\ \text{+generación de vacancias por interacción poro-spike} \\ \text{+generación de vacancias por dislocaciones y bordes de grano} \\ \text{-captura de vacancias por poros, dislocaciones y bordes de grano} \\ \text{-recombinación entre vacancias e intersticiales} \end{cases} \quad (10)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \begin{cases} \text{generación de intersticiales por irradiación} \\ \text{-captura de intersticiales por poros, dislocaciones y bordes de grano} \\ \text{-recombinación de vacancias e intersticiales} \end{cases} \quad (11)$$

En cuanto al cambio dimensional de un poro, las vacancias que ingresan a un poro contribuyen al aumento de su volumen, mientras que, si el poro absorbe intersticiales o emite vacancias, su tamaño disminuye. El análisis de los poros intergranulares debe incluir el efecto de la difusión en bordes de granos, ya que ésta es varios órdenes de magnitud mayor que la difusión en volumen.

RESULTADOS Y DISCUSIÓN

El modelo descrito previamente fue sometido a numerosas pruebas en diferentes condiciones térmicas y de irradiación para una gran variedad de microestructuras. A continuación, se presentan algunos de los resultados obtenidos numéricamente.

En primer lugar, el modelo predice la distribución inicial de poros para distintas microestructuras de

combustibles nucleares. Las microestructuras quedan determinadas a partir de la porosidad inicial, el tamaño promedio de grano y el radio promedio o mediana del radio de los poros.

En la figura 2 se muestran las distribuciones de porosidad reportadas por Harada y Doi [9] y la comparación entre los datos experimentales y las simulaciones. La microestructura designada como HD-1 corresponde a una distribución monomodal de poros con una mediana en volumen del radio de poro igual a $1,0\ \mu\text{m}$, $4,7\%$ de porosidad y un tamaño de grano promedio de $8,0\ \mu\text{m}$, mientras que HD-2 puede describirse como una superposición de dos distribuciones monomodales con medianas en volumen del radio de poros iguales a $2,0$ y $15,0\ \mu\text{m}$, una porosidad total de $5,9\%$ y tamaño de grano promedio igual a $23\ \mu\text{m}$. Si bien en A) se pueden observar pequeñas desviaciones entre los datos experimentales y los calculados mediante el modelo, en las curvas de porosidad acumulada (B) se observa un buen ajuste entre ambos. Es importante notar que una buena descripción de la distribución de porosidad depende de la ley que se utiliza para escoger los tamaños de cada clase de poro, pero al emplear la porosidad acumulada, esta influencia disminuye y por ello ésta es la curva que se emplea para realizar las comparaciones entre el modelo y las medidas experimentales.

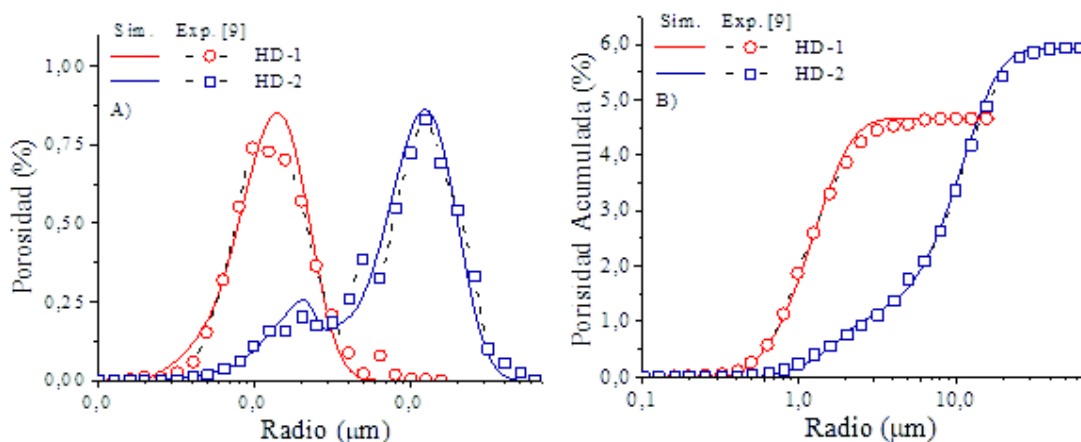


Figura 2. (A) Distribución de porosidad y (B) Porosidad acumulada para las microestructuras HD-1 y HD-2. Comparación entre los datos experimentales reportados por Harada & Doi [9] y las simulaciones realizadas con el modelo presentado en este trabajo.

Similarmente, en la figura 3(A) se muestra la distribución de porosidad y en figura 3(B) la porosidad acumulada en función de los radios de las clases de poros para dos microestructuras diferentes reportadas por Brite et al. [20]. Como puede observarse, el cálculo numérico logra un buen acuerdo con los datos experimentales.

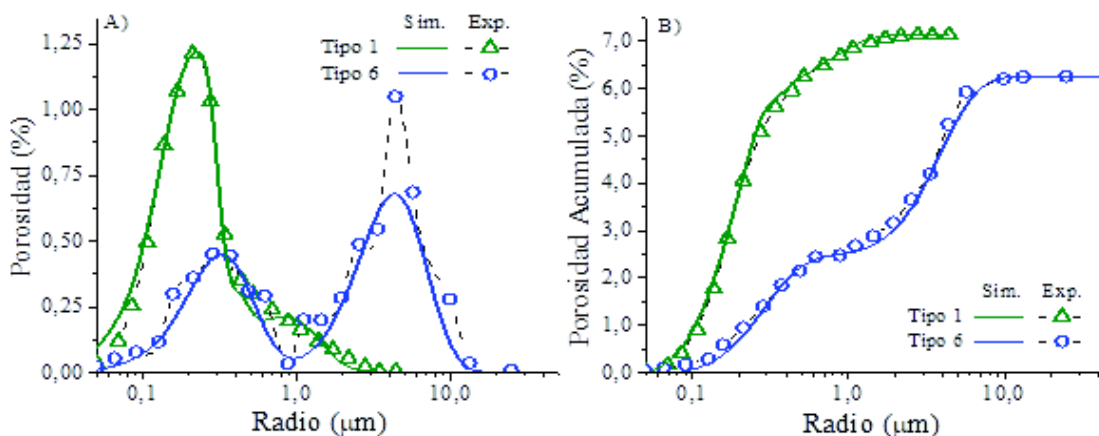


Figura 3. (A) Distribución de porosidad y (B) Porosidad acumulada para las microestructuras Tipo 1 y 6. Comparación entre los datos experimentales reportados por Brite et al. [20] y las simulaciones realizadas con el modelo presentado en este trabajo.

El modelo de densificación en su versión térmica se utilizó para simular experimentos de re-sinterizado de pastillas combustibles que se realizaron en el marco del proyecto EEI/EPRI Fuel Densificación Project [20, 22]. A su vez, se empleó el modelo de densificación bajo irradiación para simular los experimentos con irradiación involucrados en el mismo proyecto mencionado anteriormente. Se adoptó la nomenclatura de los trabajos experimentales para indicar las distintas microestructuras. Los combustibles empleados en las comparaciones presentaron tamaños de grano promedio entre 3 y 29 μm , mediana del radio de poro entre 0,2 y 24,5 μm y porosidad total promedio entre 2,1% y 11,5%, aproximadamente. En la tabla 1 se detallan las características de las microestructuras empleadas en las comparaciones.

Tabla 1. Características principales de las distribuciones de poros informadas por Brite et al. [20].

Tipo	Tamaño de grano promedio (μm)	Mediana en volumen del radio del poro (μm)		Porosidad promedio (%)	
		< 0,50 μm	> 0,50 μm	< 0,50 μm	> 0,50 μm
1	3,00	0,20	1,00	6,30	1,30
2	4,00	0,30	1,50	6,80	2,40
3	14,00	0,35	0,75	1,20	4,10
4	5,00	0,25	1,00	6,30	0,60
5	16,00	0,20	6,50	1,50	7,20
6	22,00	0,30	4,50	1,90	5,00
7	24,00	0,30	15,0	1,80	5,70
8	23,00	0,30	1,05	1,50	1,30
9	29,00	0,30	0,85	2,10	1,80
A	10,00	0,20	17,50	1,60	3,90
BSP	14,00	0,30	12,00	2,30	3,00
C	17,00	-	11,00	-	6,00
E	19,00	0,20	24,5	1,7	8,9
F	8,00	0,25	1,25	3,80	3,70
H	6,00	0,30	0,80	4,50	7,00
N	4,00	0,20	1,00	7,00	1,70
GKO	10,00 (*)	-	0,80	-	2,10

(*) El tamaño de grano promedio del combustible designado como tipo GKO no se encontraba disponible en los trabajos publicados. El valor asignado se tomó en base a microestructuras similares.

La figura 4 muestra la comparación entre los datos experimentales y las predicciones de los cambios de densidad ($\Delta\rho$), en términos del porcentaje de la densidad teórica, alcanzados durante recocidos isotérmicos para temperaturas entre 1773 K y 1973 K luego de 4, 14 y 48 horas de tratamiento.

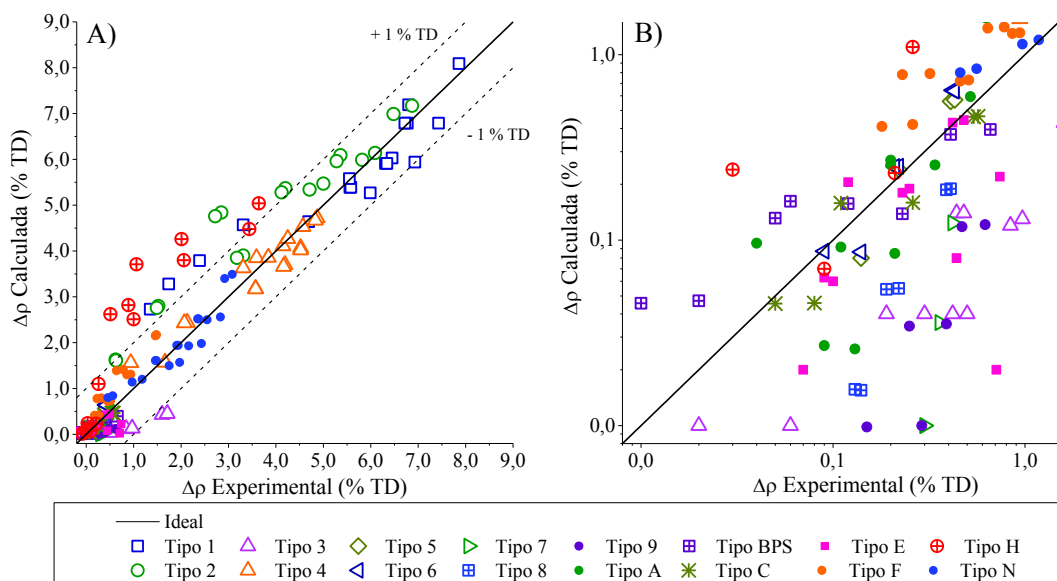


Figura 4. Comparación entre la densificación calculada y medida experimentalmente [20] empleando el modelo térmico de densificación. (A) Gráfico completo. (B) Ampliación en 0 – 1,0 % TD.

Como puede observarse, para la mayoría de las microestructuras mostradas se obtuvo un buen acuerdo entre las simulaciones y las medidas experimentales. No obstante, es notable que para los combustibles con microestructura Tipo H se obtuvieron desviaciones positivas apreciables de más de 1% TD. Estas desviaciones podrían estar asociadas principalmente a las suposiciones realizadas en el modelo y a que, dada la escasa información experimental disponible para esa microestructura, la distribución inicial de porosidad no haya tenido una buena representación por medio de la simulación. A pesar de estos apartamientos, alrededor del 88% de los casos presentados tuvieron una desviación absoluta menor al 1% TD respecto de la línea de ajuste perfecto.

Análogamente, la figura 5 muestra la comparación entre los datos experimentales y las predicciones del cambio de densidad de muestras irradiadas durante 446 y 1629 h, alcanzando temperaturas centrales entre 573 K y 1598 K, y quemados entre 2,0 y 3,6 MWd/kgU. Los datos mostrados corresponden a microestructuras que presentaron una densificación apreciable. A pesar de que se observan algunas desviaciones, los resultados obtenidos tienen buen acuerdo con los experimentos y cerca del 73% de los casos presentados tienen una desviación menor que el 1% TD respecto de la línea de ajuste perfecto. Es probable que los apartamientos observados se deban a las simplificaciones realizadas en el modelo.

Luego de probar los modelos individualmente, se incluyeron como nuevas subrutinas en la versión de producción del código DIONISIO. De esta manera, se ha verificado la capacidad predictiva de las subrutinas recientemente incorporadas teniendo en cuenta la interacción de la densificación con los múltiples fenómenos que ocurren durante una irradiación real, como por ejemplo, el gradiente térmico que se desarrolla en una pastilla y las restricciones mecánicas a la que puede estar sometida. Para estudiar los casos de densificación de pastillas sin irradiación, es decir, sometidas a historias térmicas determinadas, se desarrolló e implementó un nuevo módulo llamado DIONISIO-FEM dentro del código DIONISIO. Este nuevo módulo permite tener en cuenta, además del modelo térmico de densificación, un modelo de crecimiento de grano, de expansión térmica y las solicitaciones mecánicas que presenta el combustible al someterlo a un ciclado térmico.

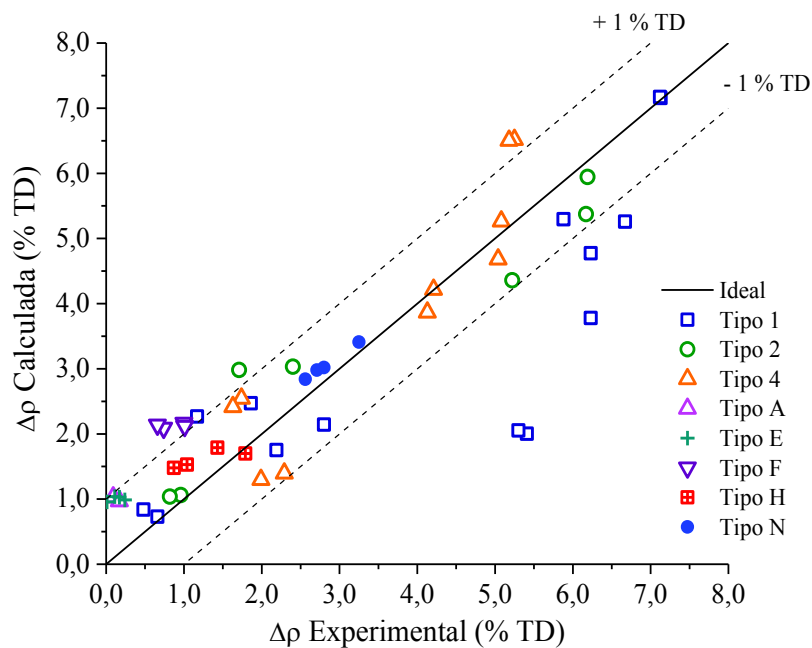


Figura 5. Comparación entre la densificación calculada y medida experimentalmente [20] empleando el modelo de densificación bajo irradiación.

En la figura 6 se observan los resultados de la simulación de la evolución de la densidad, de pastillas combustibles Tipo 4 y Tipo N, sometidas a un experimento de re-sinterizado a 1973 K y 1873 K, respectivamente, alcanzando 48 horas de permanencia a la temperatura indicada. Además, se presenta en línea punteada la historia térmica constituida por tres ciclos de 4, 14 y 34 horas de permanencia a la temperatura nominal y velocidades de enfriamiento y calentamiento de 200°C/h. Las microestructuras Tipo 4 y N son similares, con tamaño de grano promedio de 4 μm y mediana del radio de poro de 0,2 μm . En figura 6(A) se muestra la evolución del cambio de densidad que sufre una pastilla Tipo 4 con 7,03% de

porosidad inicial, durante todo el tratamiento. En general, durante las rampas de calentamiento y enfriamiento se observan cambios de densidad debido a la dilatación térmica del material. Sin embargo, en el primer calentamiento, se muestra que antes de llegar a la temperatura máxima, la densificación supera en magnitud a la dilatación térmica y se tiene un aumento de densidad significativo a partir de los 1700 K, aproximadamente, que puede atribuirse a la rápida eliminación de la porosidad de menor tamaño. Durante los sucesivos tiempos de permanencia, la densidad aumenta, pero a una velocidad mucho menor que en la primera etapa del tratamiento, de modo que los calentamientos y enfriamientos posteriores no aportan significativamente a la densificación. Esto quiere decir que, para esta microestructura, que se compone de granos y poros pequeños, durante las primeras horas del tratamiento térmico se produce prácticamente una saturación en la capacidad de reducción de poros. Además, los resultados experimentales al final de cada ciclo muestran un buen acuerdo con las simulaciones. De manera similar, en figura 6(B) se muestra la densificación para una pastilla combustible Tipo N con 5,28% de porosidad inicial. El comportamiento es muy similar al que ocurre para la microestructura Tipo 4 y dada las semejanzas entre estos combustibles, el menor efecto de la primera rampa de calentamiento, con respecto al caso anterior, se puede atribuir casi exclusivamente a la menor temperatura de permanencia del ensayo.

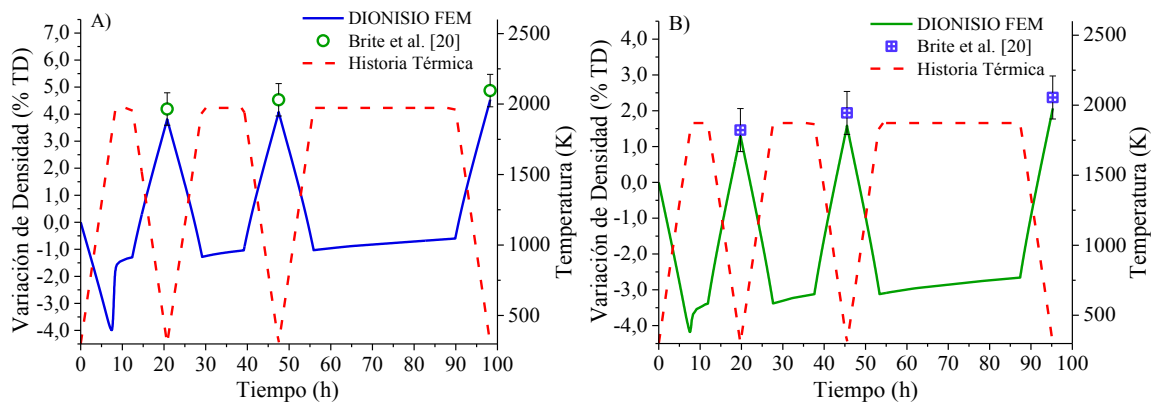


Figura 6. Comparación entre la evolución de la densidad calculada y medida experimentalmente en ensayos de resinterizado para (A) combustible Tipo 4 a 1973 K y (B) combustible Tipo N a 1873 K.

En la figura 7 se presenta la evolución de la densificación con el quemado para diferentes combustibles sometidos a irradiación.

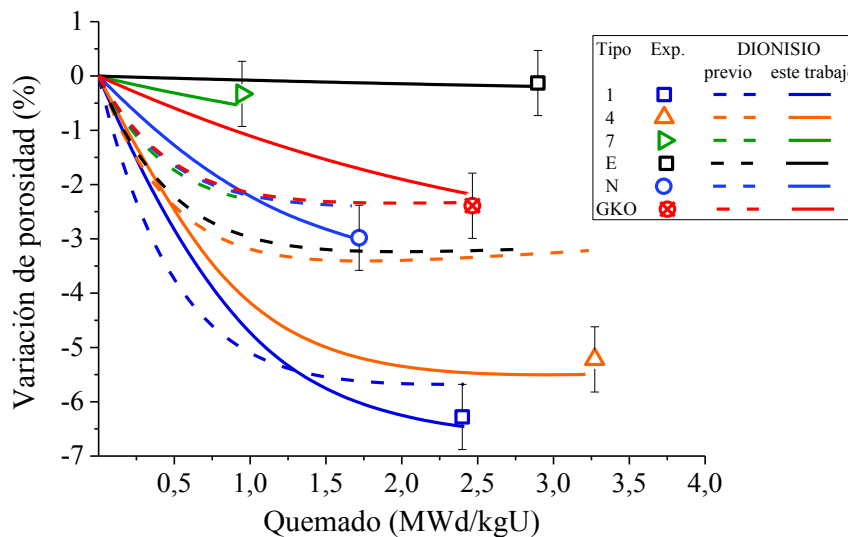


Figura 7. Resultados de las simulaciones realizadas con el nuevo modelo incorporado en DIONISIO (línea llena), el modelo previo (línea punteada) y sus comparaciones con datos experimentales para distintos combustibles [20].

En línea llena se representan los resultados obtenidos con DIONISIO usando el modelo desarrollado en este trabajo, mientras que en línea punteada los calculados con el modelo que utilizaba el código hasta el momento. Se puede observar que el acuerdo entre el valor simulado y los datos experimentales mejora con el nuevo modelo. Por otro lado, en los ejemplos simulados con el modelo anterior, el efecto del swelling comienza a notarse a partir de 1,0 MWd/kgU, mientras que, con el desarrollado en este trabajo, la densificación sigue siendo dominante hasta alrededor de los 3,0 MWd/kgU, lo cual es consistente con los datos experimentales y las suposiciones realizadas por Brite et al. [20].

CONCLUSIONES

El modelo de densificación desarrollado fue probado en una gran cantidad de condiciones térmicas, de irradiación y microestructuras, y sus resultados comparados con numerosos datos experimentales. Tanto en los casos puramente térmicos como en aquellos combinados con irradiación, el modelo presentó un desempeño satisfactorio. Las desviaciones observadas entre las predicciones numéricas y los resultados experimentales pueden explicarse debido a las simplificaciones que el modelo introduce.

El modelo fue incorporado con éxito al código de combustibles DIONISIO. En general, las simulaciones realizadas con el código utilizando el nuevo modelo de densificación han permitido obtener una descripción más precisa y detallada de la evolución de la microestructura ya que, debido al gradiente térmico que se desarrolla en la pastilla combustible, la tasa de disminución de porosidad depende de la posición radial. Además, se pueden tener en cuenta las rampas de calentamiento y enfriamiento en los ensayos de re-sinterizado. Por todo lo antedicho el modelo incorporado en el código proporcionó una mejora en las simulaciones en comparación con el modelo anterior.

REFERENCIAS

- [1] A. Soba, A. Denis, "Simulation with DIONISIO 1.0 of thermal and mechanical pellet-cladding interaction in nuclear fuel rods", *J. Nucl. Mater.*, v.374, n.1-2, p.32–43 (2008), doi:10.1016/j.jnucmat.2007.06.020.
- [2] A. Soba, A. Denis, "DIONISIO 2.0: New version of the code for simulating a whole nuclear fuel rod under extended irradiation", *Nucl. Eng. Des.*, v.292, p.213–221 (2015),doi:10.1016/j.nucengdes.2015.06.008.
- [3] E. Goldberg, M. E. Loza, A. Soba, "DIONISIO 3.0: Comprehensive 3D nuclear fuel simulation through PCMI cohesive and PLENUM models", *J. Nucl. Mater.*, v.523, p.121–134 (2019), doi:10.1016/j.jnucmat.2019.06.005.
- [4] M. Lemes, A. Denis, A. Soba, "Simulation of nuclear fuel behavior in accident conditions with the DIONISIO code", *J. Nucl. Eng. Radiat. Sci.*, v.5, n.2 (2019), doi:10.1115/1.4042705.
- [5] A. Soba, A. Denis, L. Romero, E. Villarino, F. Sardella, "A high burnup model developed for the DIONISIO code", *J. Nucl. Mater.*, v.433, n.1–3, p.160–166 (2013), doi:10.1016/j.jnucmat.2012.08.016.
- [6] M. E. Cazado, A. C. Denis, "Model of nuclear fuel pellets densification under irradiation and isothermal conditions: Application to UO₂ fuels", *J. Nucl. Mater.*, v.510, p.585–595 (2018), doi:10.1016/j.jnucmat.2018.08.029.
- [7] D. R. Olander, *Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements*, (1976). Web doi: 10.2172/7343826.
- [8] A. M. Ross, "Irradiation behaviour of fission-gas bubbles and sintering pores in UO₂", *J. Nucl. Mater.*, v.30, n.1–2, p.134–142 (1969), doi:10.1016/0022-3115(69)90175-5.
- [9] Y. Harada, S. Doi, "Irradiation Behavior of Large Grain UO₂ Fuel Rod by Active Powder", *J. Nucl. Sci. Technol.*, v.35, n.6, p.411–418 (1998), doi:10.1080/18811248.1998.9733883.
- [10] V. I. Tarasov, M. S. Veshchunov, "Models for fuel porosity evolution in UO₂ under various regimes of reactor operation", *Nucl. Eng. Des.*, v.272, p.65–83 (2014), doi:10.1016/j.nucengdes.2014.02.016.
- [11] R. J. White, M. O. Tucker, "A new fission-gas release model", *J. Nucl. Mater.*, v.118, n.1, p.1–38 (1983), doi:10.1016/0022-3115(83)90176-9.
- [12] V. D. Ozrin, V. I. Tarasov, "Model for evolution of as-fabricated pores in UO₂ fuel under irradiation conditions", in *Proceedings of IBRAE RAS. Issue 5: Models for Fission Products Release from Irradiated UO₂ Fuel*, (2008).
- [13] H. Assmann, R. Manzel, "The matrix swelling rate of UO₂", *J. Nucl. Mater.*, v.68, n.3, p.360–364, (1977), doi:10.1016/0022-3115(77)90266-5.
- [14] C. C. Dollins, F. A. Nichols, "In-pile intragranular densification of oxide fuels", *J. Nucl. Mater.*, v.78, n.2, p.326–335 (1978), doi:10.1016/0022-3115(78)90454-3.
- [15] H. Assmann, H. Stehle, "Thermal and in-reactor densification of UO₂: Mechanisms and experimental results", *Nucl. Eng. Des.*, v.48, n.1, p.49–67 (1978), doi:10.1016/0029-5493(78)90208-X.

- [16] B. Auskern, J. Belle, "Uranium ion self-diffusion in UO_2 ", *J. Nucl. Mater.*, v.3, n.3, p.311–319 (1961), doi:10.1016/0022-3115(61)90199-4.
- [17] J. F. Marin, P. Contamin, "Uranium and oxygen self-diffusion in UO_2 ", *J. Nucl. Mater.*, v.30, n.1-2, p.16–25 (1969), doi:10.1016/0022-3115(69)90164-0.
- [18] S. Yajima, H. Furuya, T. Hirai, "Lattice and grain-boundary diffusion of uranium in UO_2 ", *J. Nucl. Mater.*, v.20, n.2, p.162–170 (1966), doi:10.1016/0022-3115(66)90004-3.
- [19] H. Matzke, "Atomic mechanisms of mass transport in ceramic nuclear fuel materials", *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, v.86, n.8, p.1243–1256 (1990), doi:10.1039/ft9908601243.
- [20] D. W. Brite, J. L. Daniel, N. C. Davis, M. D. Freshley, P. E. Hart, R. K. Marshall, "EEI/EPRI Fuel Densification Project. Report, EPRI-131" (1975).
- [21] A. Höh, H. Matzke, "Fission-enhanced self-diffusion of uranium in UO_2 and UC", *J. Nucl. Mater.*, v.48, n.2, p.157–164 (1973), doi:10.1016/0022-3115(73)90150-5.
- [22] M. D. Freshley, D. W. Brite, J. L. Daniel, P. E. Hart, "Irradiation-induced densification of UO_2 pellet fuel", *J. Nucl. Mater.*, v.62, n.2–3, p.138–166 (1976), doi:10.1016/0022-3115(76)90013-1.