

MODELO DE DENSIFICACIÓN DE PASTILLAS COMBUSTIBLES BAJO IRRADIACIÓN

Mauricio E. Cazado y Alicia Denis

*Sección Códigos y Modelos, Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear, CAC, CNEA,
Av. Gral. Paz 1499, B1650KNA San Martín, Buenos Aires, Argentina, cazado@cnea.gov.ar,
<http://www.cnea.gov.ar>*

Palabras Clave: simulación combustible nuclear, densificación, microestructura.

Resumen. Una vez finalizado el proceso de fabricación de pastillas combustibles, la microestructura mantiene una cierta porosidad. Durante la irradiación se producen dos fenómenos contrapuestos que afectan la estabilidad dimensional del combustible: densificación e hinchamiento. La densificación es la contracción que sufren los poros de fabricación durante las primeras horas de irradiación, mientras que el hinchamiento ocurre principalmente debido a los gases de fisión que se liberan y acumulan tanto en las nuevas burbujas que se nuclean como en ciertos poros de fabricación durante todo el quemado del combustible. Los cambios dimensionales que se generan pueden dar lugar a contacto localizado entre la pastilla y la vaina y, eventualmente, ocasionar la falla de los componentes lo cual comprometería la seguridad de las instalaciones nucleares. Es fundamental efectuar una descripción cuantitativa de estos procesos junto a las relaciones que tienen con las variables operacionales y los parámetros del material para poder determinar las propiedades limitantes de los materiales involucrados y mejorar el desempeño de los códigos en las simulaciones. El modelo de densificación que se presenta explica la contracción de los poros como consecuencia de la emisión de vacancias y recepción de intersticiales por los poros bajo los efectos de la temperatura y la irradiación. Asimismo, muestra que la densificación se debe principalmente a la desaparición de los poros más pequeños, modificándose así la distribución de tamaños de poros. Para ello, se resuelven las ecuaciones de difusión de vacancias e intersticiales, en un grano promedio de UO_2 que se supone esférico, a través del método de diferencias finitas. Como primera aplicación, este modelo se utilizó para describir la densificación en experimentos de resinterizado en los cuales sólo se observa el efecto de la temperatura. Los resultados obtenidos por las simulaciones se comparan con los datos experimentales reportados en la literatura abierta, obteniendo un buen acuerdo. Se destaca que se encuentra aún en desarrollo un modelo de hinchamiento.

1 INTRODUCCIÓN

Durante la fabricación del combustible nuclear, el material es sinterizado a altas temperaturas para producir pastillas con una densidad entre 90% y 96% de la densidad teórica del dióxido de uranio (UO_2). La porosidad remanente es necesaria para acomodar, al menos en parte, los gases de fisión que se generan durante el quemado del combustible. A medida que se lleva a cabo la irradiación del mismo, los poros de fabricación tienden a reducir su tamaño en un proceso denominado densificación. A la vez, los gases de fisión que se liberan se acumulan tanto en los poros iniciales como en nuevas cavidades (denominadas burbujas) que se nuclean, dando lugar al hinchamiento. Estos fenómenos son unos de los responsables de generar los cambios dimensionales que imponen restricciones operacionales en los reactores (Olander, 1976; Assmann and Stehle, 1978; Freshley et al., 1976).

Aun cuando el fenómeno de densificación es bien conocido, el mecanismo por el cual se produce no está totalmente dilucidado. Existen diferentes modelos en los cuales se tienen en cuenta los defectos puntuales (vacancias y/o intersticiales) producidos tanto por efectos térmicos como de la radiación y su difusión desde y hacia las fuentes y sumideros. (Lindman, 1977; Assmann and Stehle, 1978; Dollins and Nichols, 1978; Bouguerra and Si-Ahmed, 1991; Dollins, 1993; Veshchunov and Shestak, 2009; Tarasov and Veshchunov, 2014).

El efecto de la densificación es dominante a bajos quemados mientras que el hinchamiento es el que domina a quemados entre intermedios y altos. En este trabajo se presenta un modelo, basado en la difusión de defectos puntuales, destinado a evaluar la densificación del combustible bajo condiciones de irradiación. Adicionalmente, se plantea un modelo derivado del anterior para ensayos isotérmicos sin radiación.

2 PROPIEDADES DEL MATERIAL DE LAS PASTILLAS COMBUSTIBLES

2.1 Estructura del dióxido de uranio

El dióxido de uranio (UO_2) es un cerámico con una estructura cristalina del tipo fluorita que presenta una densidad teórica de $10,96 \text{ g/cm}^3$. La termodinámica del sólido predice la existencia de defectos dentro de la estructura para minimizar la energía del cristal. Estos defectos pueden ser dislocaciones, bordes de granos (si se trata de un material policristalino), y vacancias e intersticiales, tanto catiónicos (U^{4+}) como aniónicos (O^{2-}). Existe evidencia experimental de que el defecto neutro compuesto por dos átomos de oxígeno y uno de uranio resulta favorable en su formación (Kuganathan *et al.*, 2017). Por esta razón, cuando se enuncie a las vacancias o intersticiales se estará haciendo referencia al conjunto neutro UO_2 . Sin embargo, dado que los procesos difusivos involucran la migración de ambas especies atómicas, estos estarán controlados por el más lento, que resulta ser el catión de uranio.

Por simplicidad se considera que las dislocaciones presentes en el sólido son sólo de tipo "borde". Las dislocaciones de borde se pueden representar como un semiplano extra o faltante en la red. Este defecto crea un campo de tensiones alrededor de la línea de dislocación, que pueden ser de tracción en la zona inferior y de compresión en la zona superior. Las vacancias son atraídas por el campo de compresión, mientras que los intersticiales lo son por el campo de tracción.

Además, un sólido policristalino se encuentra formado por granos con una orientación atómica bien definida. La línea que los separa se conoce como borde de grano (BG) y constituye la zona de ajuste entre las diferentes orientaciones cristalinas, con un ancho de algunas capas atómicas. Estas zonas poseen alta energía por lo que existe una tendencia a acomodar defectos en ella para minimizar la energía del material (Olander, 1976).

2.2 Porosidad inicial del combustible

Una vez fabricada la pastilla combustible, su microestructura presenta poros intergranulares (en borde de grano) e intragranulares (dentro de cada grano) con diferentes distribuciones de tamaños de poros. Existen datos experimentales, como los proporcionados por Ross (1969), en los que se puede observar que los poros cuyos radios son menores a 0,15 μm se eliminan totalmente cuando las muestras son irradiadas, incluso a quemados bajos del orden de los 400 MWd/tU. Esto da evidencia de que la densificación ocurre a distintas velocidades para diferentes tamaños de poros por lo que se hace necesario que la simulación contemple la distribución de tamaños de poros.

De acuerdo con Tarasov et al. (2016, 2014), los poros de fabricación se pueden caracterizar por una función distribución de concentración de poros $n_p(r,t)$, de modo tal que $n_p(r,t)dr$ corresponde a la concentración de poros con radios entre r y $r + dr$. De manera similar, la función de distribución de porosidad $p(r,t)$ es tal que $p(r,t)dr$ representa la fracción de volumen ocupada por todos los poros con radios entre r y $r + dr$. Para simplificar el modelo se considerará un número finito de clases de poros y se supondrá que su concentración inicial no se modifica en el tiempo, sino que los cambios en la porosidad se deben a cambios en los tamaños de poros. Una de las limitaciones experimentales es el radio mínimo, R_c , observable por la técnica usada para medir los radios de los poros. Por simplicidad, este modelo supone que no existen poros con radios inferiores a dicha cota. Las consideraciones enumeradas se pueden tener en cuenta a través de la expresión:

$$n_p(r) = \begin{cases} 0 & r < R_c \\ \frac{n_0}{R_0} e^{-r/R_0}, & r \geq R_c \end{cases} \quad (1)$$

$$p(r) = n_p(r) \cdot V(r) \quad (2)$$

donde n_0 y R_0 son parámetros de ajuste de la distribución y V es el volumen del poro.

Si se trata de poros intragranulares, se los considera esféricos por lo que el volumen es $\frac{4}{3}\pi r^3$ y el área es $4\pi r^2$. En cambio, si los poros son intergranulares, se supone que presentan una forma lenticular con un ángulo diedro $\theta = 50^\circ$, cuyo volumen y área superficial se puede calcular como:

$$V = \frac{4}{3}\pi\rho^3 F_{VOL} = \frac{4}{3}\pi r^3 \frac{F_{VOL}}{\sin^3\theta} \quad (3)$$

$$A = 4\pi\rho^2 F_{SUP} = 4\pi r^2 \frac{F_{SUP}}{\sin^2\theta} \quad (4)$$

donde $r = \rho \sin\theta$, ρ es el radio de curvatura del poro, r es el radio medido experimentalmente, $F_{VOL} = 1 - \frac{3}{2}\cos\theta + \frac{1}{2}\cos^3\theta$ y $F_{SUP} = 1 - \cos\theta$ son las funciones de forma de volumen y superficie, respectivamente.

3 MODELO DE DENSIFICACIÓN

3.1 Densificación bajo irradiación

En el modelo que se presenta en este trabajo se tienen en cuenta los siguientes conceptos:

- Cuando se fisiona un átomo de uranio se producen, además de nuevos neutrones, dos fragmentos de fisión altamente energéticos, denominados *spikes*, que presentan dos efectos muy importantes. Por un lado, los fragmentos colisionan con los átomos de la red desplazándolos de sus posiciones de equilibrio produciendo un efecto en cadena

llamado cascada de daño. Los desplazamientos atómicos (d.p.a.) dejan como consecuencia pares de huecos y átomos intersticiales llamados pares de Frenkel. Al generarse la cascada de daño, si los defectos puntuales se crean cerca entre sí, tienen la posibilidad de recombinarse por lo que no se tienen en cuenta. Sin embargo, alrededor del 10% de los defectos creados en las cascadas de daños son capaces de migrar por la red (Olander, 1976; Dollins and Nichols, 1978). Por otro lado, los *spikes* tienen la posibilidad de encontrar un poro en su camino o pasar cerca de él generando una distorsión en su entorno. Dicha distorsión hace que el poro libere vacancias (Assmann and Stehle, 1978; Stehle and Assmann, 1974, 1976).

- b) Las vacancias pueden emitirse térmicamente a partir de una dislocación, borde de grano o superficie de un poro. Al mismo tiempo las dislocaciones, los bordes de grano y los poros puede actuar como sumideros para los defectos.
- c) Un poro se contrae por la captura de intersticiales y emisión de vacancias, mientras que aumenta su tamaño si absorbe vacancias.

3.1.1 Evolución de defectos puntuales

Para desarrollar el modelo de densificación se requiere conocer la concentración de los defectos puntuales en el volumen del sólido. Por simplicidad en los cálculos, la evolución de defectos con el tiempo se evaluará tomando un valor promedio en el espacio. Teniendo en cuenta que la concentración de defectos está dada en forma fraccional, es decir número de defectos por sitios de uranio en la red, se tiene que:

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = \dot{K} + \sum_{k=1}^n (S_{pv_k} D_v C_v^{ps_k} + NK_k) + (S_{dv} + S_{BGv}) D_v C_v^{eq} - S_{tv} D_v C_v - \alpha D_i C_i C_v \quad (5)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \dot{K} - S_{ti} D_i C_i - \alpha D_i C_i C_v \quad (6)$$

$$S_{t,x} = (S_{dx} + \sum_{k=1}^n S_{px_k} + S_{GBx}) \quad (7)$$

donde los índices “i” y “v” significan intersticiales y vacancias, respectivamente, n es el número de clases de poros evaluado, C_v y C_i son las concentraciones defectos en el volumen del sólido, C_v^{sp} es la concentración de vacancias en la superficie del poro; D_v y D_i son los coeficientes de difusión de defectos en volumen del sólido, $S_{t,x}$ es la fuerza total de sumidero con $x=i,v$, S_{dx} , S_{px} y S_{BGx} son las fuerzas de sumideros de defectos para dislocaciones, poros y borde de grano, respectivamente, $\dot{K} = Y_{vi} \Omega \dot{F}$ es la tasa de generación de defectos puntuales por irradiación, Y_{vi} es el número de defectos capaces de escapar de una cascada de daño, Ω es el volumen de un defecto del tipo UO_2 , \dot{F} es la tasa de fisión (fisiones producidas por unidad de volumen y de tiempo), NK_k representa la emisión de vacancias por interacción poro-spike y α es el coeficiente de recombinación vacancia-intersticial.

El coeficiente α se puede calcular como $4\pi a/\Omega$ (Veshchunov and Shestak, 2009; Wolfer, 1981), siendo a el parámetro de red del UO_2 . Esto da un valor aproximado de $1,68 \times 10^{20}$, el cual tiene buen acuerdo con el número recomendado de 10^{20} por Griesmeyer and Ghoniem (1979a).

Cuando los defectos puntuales se encuentran dentro del radio de influencia de una dislocación, son capturados produciendo el salto de la misma. La fuerza de sumidero de una dislocación está dada por:

$$S_{dv,i} = \frac{2\pi\rho_D z_{v,i}}{\ln(r_{md}/r_{cd})} \quad (8)$$

donde ρ_D es la densidad de dislocaciones, r_{md} es la distancia media entre dislocaciones, r_{cd} es el radio de influencia de una dislocación y $z_{v,i}$ es un factor que mide la avidez por un tipo de defecto u otro siendo para intersticiales mayor que para vacancias debido a una mayor interacción elástica entre la dislocación y los intersticiales. Para el cálculo de la densidad de dislocaciones se emplea la expresión empírica (Khvostov, Mikityuk and Zimmermann, 2011):

$$\rho_D = \text{máx}[10^{12}, \exp(-2.07 \times 10^{-3}(T - 273) + 21.82)] \quad (9)$$

$$r_{md} \approx \frac{1}{\sqrt{\pi\rho_D}} \quad (10)$$

De acuerdo con Olander (1976), la fuerza de sumidero para poros se puede aproximar como $4\pi R_p N_p$, siendo N_p la concentración de poros de radio R_p .

Para el cálculo de la fuerza de sumidero de BG se utiliza la aproximación (Brailsford and Bullough, 1981) dada por $3(S_{dx} + S_{px})^{1/2}/R_g$, donde R_g es el radio promedio de un grano.

El término NK de la expresión (5) evalúa la producción de vacancias por la interacción poro-spike. Las expresiones para poros intragranulares ($NK^{(a)}$) e intergranulares ($NK^{(e)}$) son respectivamente:

$$NK^{(a)} = 2\pi(R_p^a + R_{int})^2 N_p^a \Omega \dot{F} \eta \lambda \quad (11)$$

$$NK^{(e)} = 2\pi(R_p^e + R_{int})^2 N_p^e \Omega \dot{F} \eta \lambda F_{SUP} f_{sat} f_{vl} \frac{1}{\text{sen}^2\theta} \quad (12)$$

donde $R_p + R_{int}$ es el radio de influencia del spike al poro, N_p es la concentración de poros de radio R_p , η es la cantidad de vacancias que salen luego de cada interacción, λ es la distancia que recorre un *spike* con energía suficiente para perturbar a un poro, f_{vl} es el volumen de vacancias que hay dentro de un poro, f_{sat} es una función que mide fraccionalmente la capacidad de recibir vacancias que tiene el medio respecto de la concentración de saturación de vacancias (Bouloré, 2001; Dollins and Nichols, 1978; Bouguerra and Si-Ahmed, 1991).

$$f_{vl} = \frac{V - n_g^0 b_{He}}{V} \quad (13)$$

$$f_{sat} = 1 - \frac{C_v}{C_{vsat}} \quad (14)$$

donde V es el volumen del poro, n_g^0 es el número de moles de gas de sinterización inicial, b_{He} es la constante de van der Waals para el helio (gas comúnmente usado como atmósfera de sinterización) y C_{vsat} es la concentración de saturación de vacancias.

El coeficiente de difusión para intersticiales se computa como $D_i = \left(\frac{a}{2}\right)^2 v_i \exp\left(-\frac{28000}{RT}\right)$, donde $v_i = 10^{13} \text{ s}^{-1}$ es la frecuencia de salto intersticial, $R = 8,314 \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-1}$ y T la temperatura en Kelvin (Veshchunov and Shestak, 2009).

El coeficiente de difusión para vacancias se calcula a partir de la concentración de vacancias y del coeficiente de autodifusión. La autodifusión se puede expresar como la suma de los mecanismos de migración por vacancias e intersticiales:

$$D_U \approx D_v C_v + D_i C_i \quad (15)$$

A temperaturas por debajo de los 1500°C ambos mecanismos de migración son

comparables y $D_U \approx 2D_v C_v \approx 2D_i C_i$, mientras que por encima de esa temperatura se puede considerar que $D_U \approx D_v C_v \gg D_i C_i$ (Veshchunov, 2000; Veshchunov and Shestak, 2009). Además, para temperaturas menores a los 1000°C la autodifusión es atérmica y depende linealmente de la tasa de fisión; a medida que la temperatura aumenta, el coeficiente de autodifusión alcanza su valor térmico, por lo que puede escribirse como:

$$D_U = A\dot{F} + D_{U0} \exp(-E_U/RT) \quad (16)$$

donde A es una constante que vale $1.2 \times 10^{-39} m^5$, D_{U0} es el coeficiente preexponencial y E_U es la energía de migración por autodifusión (Matzke, 1983).

La concentración en equilibrio termodinámico de defectos puntuales se puede calcular usando las ecuaciones de Arrhenius:

$$C_v^{eq} = C_{v0} \times \exp(-E_v/k_b T) \quad (17)$$

$$C_i^{eq} = C_{i0} \times \exp(-E_i/k_b T) \quad (18)$$

donde k_b es la constante de Boltzmann, C_{v0} , C_{i0} son coeficientes preexponenciales y E_v , E_i corresponden a las energías de formación de defectos cuyos valores se encuentran a partir del trabajo desarrollado por Griesmeyer y Ghoniem (1979b). En la superficie del poro se supone que la concentración de intersticiales es cero, mientras que la de vacancias se puede calcular con (Olander, 1976; Veshchunov and Shestak, 2009):

$$C_v^{ps} = C_v^{eq} \exp(-\Omega \Delta P/k_b T) \quad (19)$$

donde ΔP es la diferencia de presión en la superficie del poro,

$$\Delta P^a = p_{in}^a - p_h - \frac{2\gamma}{R_p^a} \quad (20)$$

$$\Delta P^e = p_{in}^e - p_h - \frac{2\gamma \text{sen}^3 \theta}{R_p^e F_{SUP}} \quad (21)$$

donde p_{in} es la presión interna del poro, p_h es la presión hidrostática y γ es la tensión superficial (Veshchunov and Shestak, 2009; Bouloré, 2001). La presión interna del poro se puede calcular usando la ecuación de van der Waals para gases $p_{in}(V_p - n_g^0 b_{HE}) = n_g^0 RT$, siendo n_g^0 el número inicial de moles de gas en el poro y b_{HE} la contante de volumen de van der Waals para el helio.

3.1.2 Evolución del tamaño de poro y la porosidad

El cambio de dimensiones de un poro está dado por el flujo neto de vacancias e intersticiales a través de la superficie del poro. Entonces, es importante distinguir entre poros intragranulares e intergranulares, principalmente por que los poros ubicados en el borde de grano se verán afectados además por el mecanismo de difusión de vacancias por borde de grano. La variación de volumen se expresa como (Bouloré, 2001; Tarasov and Veshchunov, 2016; Bouguerra and Si-Ahmed, 1991):

$$\frac{dV_p^a}{dt} = 4\pi R_p^a D_v (C_v - C_v^{sp}) - 4\pi R_p^a D_i C_i - 2\pi (R_p^a + R_{int})^2 \Omega \dot{F} \eta \lambda \quad (22)$$

$$\begin{aligned} \frac{dV_p^e}{dt} = & 4\pi R_p^e D_v (C_v - C_v^{sp}) - 4\pi R_p^e D_i C_i + 4\pi w D_{Ugb} \frac{\Omega \Delta P^e}{k_b T} \\ & - 2\pi (R_p^e + R_{int})^2 \Omega \dot{F} \eta \lambda F_{SUP} f_{sat} f_{vl} \frac{1}{\text{sen}^2 \theta} \end{aligned} \quad (23)$$

donde el superíndice a y e da lugar a la distinción entre intragranular e intergranular,

respectivamente. Teniendo en cuenta que $V_p^a = \frac{4}{3}\pi(R_p^a)^3$ y $V_p^e = \frac{4}{3}\pi(R_p^e)^3 \frac{F_{VOL}}{\text{sen}^3\theta}$, $R_p^e = \rho \text{sen}\theta$, se obtiene a partir de (22) y (23), la variación del radio del poro en el tiempo como:

$$\frac{dR_p^a}{dt} = \frac{1}{R_p^a} D_v (C_v - C_v^{sp}) - \frac{1}{R_p^a} D_i C_i - \frac{(R_p^a + R_{int})^2}{2R_p^{a2}} \Omega \dot{F} \eta \lambda \quad (24)$$

$$\frac{dR_p^e}{dt} = \frac{\text{sen}^3\theta}{R_p^e F_{VOL}} \left[D_v (C_v - C_v^{sp}) - D_i C_i + w D_{Ugb} \frac{\Omega \Delta P^e}{k_b T R_p^e} - \frac{(R_p^e + R_{int})^2}{2R_p^e} \Omega \dot{F} \eta \lambda F_{SUP} f_{sat} f_{vl} \frac{1}{\text{sen}^2\theta} \right] \quad (25)$$

El coeficiente de autodifusión en borde de grano utilizado en el modelo corresponde al ajustado a través de los datos experimentales presentados por Alcock et al. (IAEA, 1966) para temperaturas por arriba de los 1800 K. Por debajo de esa temperatura se utilizó la aproximación $D_{Ugb} \approx 10^5 D_U$ (Bouloré, 2001)

3.2 Densificación en condiciones isotérmicas

A partir del modelo presentado en la sección 3.1, se obtiene un modelo simple para evaluar el comportamiento térmico de la densificación. Para ello se eliminan los términos de radiación y se desprecia el efecto de los intersticiales, obteniéndose:

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = \sum_{k=1}^n (S_{pv_k} D_v C_v^{ps_k}) + (S_{dv} + S_{BGv}) D_v C_v^{eq} - S_{tv} D_v C_v \quad (26)$$

$$\frac{dR_p^a}{dt} = \frac{1}{R_p^a} D_v (C_v - C_v^{sp}) \quad (27)$$

$$\frac{dR_p^e}{dt} = \frac{\text{sen}^3\theta}{R_p^e F_{VOL}} \left[D_v (C_v - C_v^{sp}) + w D_{Ugb} \frac{\Omega \Delta P^e}{k_b T R_p^e} \right] \quad (28)$$

Estas expresiones permitirán efectuar una comparación con datos experimentales medidos a temperatura constante, como se verá en la sección 5.

4 SIMULACIÓN NUMÉRICA

Para probar el modelo de densificación bajo irradiación es necesario integrar numéricamente las ecuaciones acopladas (5), (6), (24) y (25). Dado que el sistema resulta rígido, se utiliza el método de Euler implícito para resolver las ecuaciones (5) y (6), y el de Runge-Kutta de cuarto orden para las ecuaciones (24) y (25). Entonces se tiene que:

$$C_{v,i}^{l+1} = C_{v,i}^l + \frac{\partial C_{v,i}^{l+1}}{\partial t} h \quad (29)$$

$$R_p^{(a)l+1} = R_p^{(a)l} + \frac{1}{6} (K_1 + K_2 + K_3 + K_4) h \quad (30)$$

$$\begin{aligned} K_1 &= \frac{dR_p^{(a)}}{dt} (t^l, R_p^{(a)l}) \\ K_2 &= \frac{dR_p^{(a)}}{dt} (t^l + \frac{1}{2}h, R_p^{(a)l} + \frac{1}{2}K_1h) \\ K_3 &= \frac{dR_p^{(a)}}{dt} (t^l + \frac{1}{2}h, R_p^{(a)l} + \frac{1}{2}K_2h) \\ K_4 &= \frac{dR_p^{(a)}}{dt} (t^l + h, R_p^{(a)l} + K_3h) \end{aligned} \quad (31)$$

donde el superíndice l indica el tiempo y h es el paso temporal. De manera análoga se resuelve para obtener $R_p^{(e)}$. En la Tabla 1 se encuentran los parámetros usados en el modelo y sus respectivos valores numéricos.

Símbolo	Descripción	Unidades	Valor usado
a	Parámetro de red del UO_2 .	m	$5,47 \times 10^{-10}$
A	Constante semi-empírica para la autodifusión mejorada por radiación.	m^5	$1,2 \times 10^{-39}$
b_{HE}	Constante volumétrica de van der Waals para el helio.	m^2/mol	$2,37 \times 10^{-5}$
C_{i0}	Constante preexponencial para la concentración de intersticiales.	-	0,5
C_{v0}	Constante preexponencial para la concentración de vacancias.	-	2
D_{U0}	Contante preexponencial para autodifusión	m^2/s	2×10^{-4}
D_{Ugb0}	Contante preexponencial para autodifusión en borde de grano.	m^2/s	$6,14 \times 10^{-6}$
E_i	Energía de formación de intersticiales.	eV	6,2
E_v	Energía de formación de vacancias.	eV	3,3
E_U/R	Energía de migración para autodifusión	K^{-1}	64200
E_{Ugb}/R	Energía de migración para autodifusión en borde de grano.	K^{-1}	35371,4
\dot{F}	Tasa de fisión.	$Fis/m^3.s$	-
k_b	Constante de Boltzmann.	J/K	$1,38 \times 10^{-23}$
R	Constante para gas ideal.	J/mol.K	8.314
r_{cd}	Radio de influencia de una dislocación.	m	6×10^{-10}
R_{int}	Radio de	m	1×10^{-9}
T	Temperatura.	K	-
Y_{vi}	Número de defectos puntuales que escapan de una cascada de daño.	-	10^4
z_i	Factor de influencia de una dislocación para intersticiales.	-	1.03
z_v	Factor de influencia de una dislocación para vacancias.	-	1.00
γ	Tensión superficial.	J/m	0.629
η	Número de vacancias que escapan en cada interacción poro-spike.	-	-
θ	Ángulo Diedro.	°	50
λ	Camino del fragmento de fisión.	m	1×10^{-6}
ρ_D	Densidad de dislocaciones.	m^{-2}	-

Tabla 1 – Lista de símbolos usados.

Para probar el modelo de densificación isotérmico es necesario integrar numéricamente las ecuaciones acopladas (29), (30) y (31) aplicadas a un grano del material, de manera análoga a lo mostrado para el problema con irradiación.

5 RESULTADOS

En el trabajo realizado por Freshley et al. (1976) se presentan mediciones de densificación practicadas sobre pastillas de UO_2 con diferentes microestructuras. Entre ellas, se eligieron para esta etapa de nuestro trabajo aquellas realizadas en pastillas no irradiadas que fueron sometidas a recocidos isotérmicos. El propósito es, por un lado, examinar la validez de nuestro modelo en condiciones isotérmicas, expresado en las ecuaciones (29), (30) y (31). Por otro lado, este análisis permite evaluar la contribución que tendrá la parte térmica en la densificación de pastillas irradiadas. Este aspecto será estudiado en el futuro cercano.

En los experimentos se observa que los mayores cambios de densidad se manifiestan en combustibles con pequeño grano y elevada porosidad inicial, con alta proporción de poros pequeños. Para este trabajo se han elegido las muestras que el autor designa como tipos 1, 2 y 4 para comparar los resultados del modelo pues permiten analizar la evolución de las poblaciones de poros. En la Tabla 2 se presentan las principales características microestructurales de estos combustibles antes del resinterizado.

tipo de combustible	radio del grano (m)	mediana del volumen de poros	volumen de poros (%)	mediana del volumen de poros	volumen de poros (%)
		poros con radio <0,5 m		poros con radio >0,5 m	
1	$1,5 \times 10^{-6}$	$0,20 \times 10^{-6}$	8,29	$1,0 \times 10^{-6}$	1,71
2	$2,0 \times 10^{-6}$	$0,30 \times 10^{-6}$	6,95	$1,5 \times 10^{-6}$	2,45
4	$2,5 \times 10^{-6}$	$0,25 \times 10^{-6}$	6,67	$1,0 \times 10^{-6}$	0,63

Tabla 2 – Datos de la microestructura para los combustibles usados en las simulaciones.

En la Figura 1a) se presenta la aproximación de la distribución de porosidad inicial para los datos experimentales correspondientes al combustible tipo 4, empleando las ecuaciones (1) y (2). Se puede observar un buen acuerdo en la simulación. En la Figura 1b) se presentan las distribuciones iniciales de porosidad predicha por la simulación para los tres tipos de combustibles elegidos.

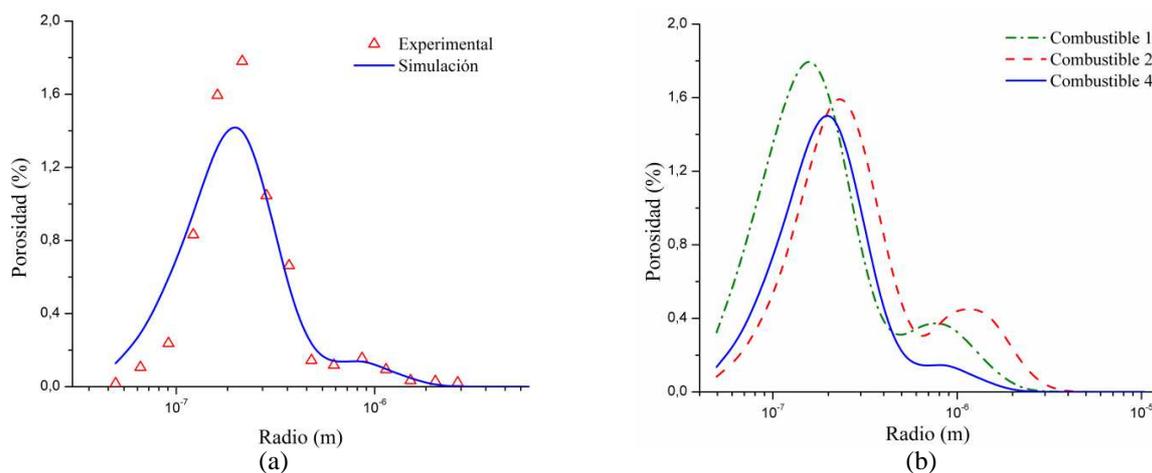


Figura 1 – a) Comparación entre la distribución de poros experimentales (Freshley et al., 1976) y la obtenida por medio de la simulación (1), (2). b) Simulación de distribución de poros para distintas microestructuras.

En la Figura 2 se presenta la comparación entre los datos experimentales y los valores calculados con el modelo presentado en la sección 3.2. Aquí se representa la densificación alcanzada luego un tratamiento isotérmico por 48 h para temperaturas entre 1773 K y 1973 K.

En la mayoría de los casos simulados los puntos se alejan poco de la línea de acuerdo perfecto.

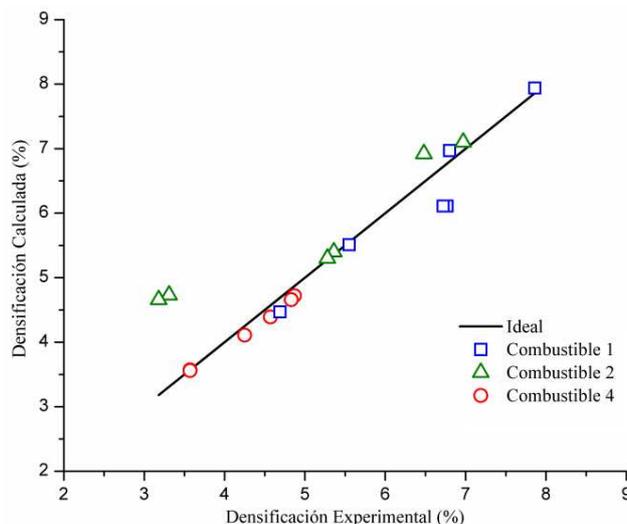


Figura 2 – Comparación entre la densificación calculada y medida para ensayos isotérmicos (Freshley *et al.*, 1976)

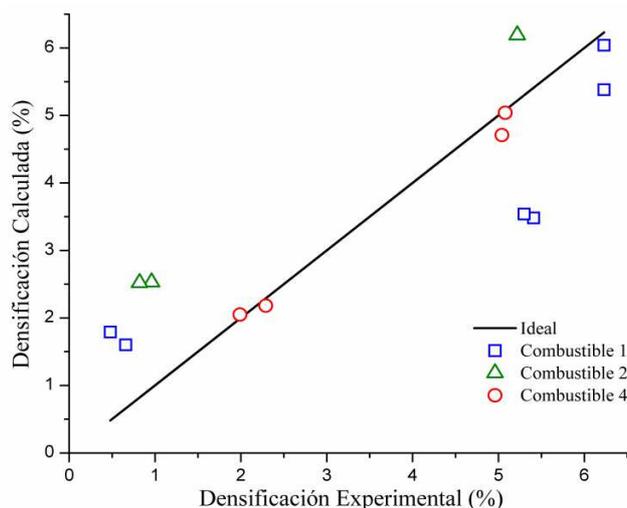


Figura 3 – Comparación entre la densificación calculada y medida para muestras irradiadas (Freshley *et al.*, 1976)

En la Figura 3 se muestra la comparación entre los datos experimentales de muestras irradiadas y los valores calculados con el modelo presentado en la sección 3.1. Aquí se representa la densificación alcanzada en muestras con una temperatura central promedio de la muestra entre 773 K y 1600 K. Para el combustible tipo 4 los valores calculados se alejan muy poco del caso ideal, mostrando un buen acuerdo. Sin embargo, para los combustibles tipo 1 y 2 los puntos se apartan más, en especial a temperaturas menores a 1250K.

6 DISCUSIÓN Y CONCLUSIONES

Los resultados obtenidos hasta el momento muestran un buen acuerdo con los datos experimentales de porosidad medida en tratamientos isotérmicos, como puede observarse en la Figura 2. Las desviaciones observadas en algunos puntos se pueden atribuir a la incertidumbre de los coeficientes de difusión empleados (Veshchunov and Shestak, 2009;

IAEA, 1966). Por otro lado, y debido a la ausencia de información experimental, se supuso que la distribución de la porosidad para combustibles tipo 1 y 2 sigue la misma ley que la presentada para el combustible tipo 4. Esto podría tener influencia en los valores presentados.

En cuanto a los ensayos con radiación, si bien los valores de densificación simulados presentan ciertas desviaciones respecto de los medidos, como puede observarse en la Figura 3, se destaca que los valores obtenidos están en el orden de magnitud de los valores medidos. El modelo con radiación aún se encuentra en estudio para mejorar el ajuste y el desempeño del mismo. Al igual que lo expuesto para los recocidos isotérmicos, las desviaciones que se observan, de a lo sumo 30%, pueden deberse a que las distribuciones de porosidad para los combustibles 1 y 2 se suponen con la misma ley que para el combustible 4. Por otro lado, en el modelo actualmente bajo análisis, los cálculos se realizan en un único grano del material y para una temperatura fija. Al extrapolar los resultados a toda la pastilla combustible, esas restricciones equivalen a suponer que la estructura y temperatura son homogéneas en toda la pastilla. Esta condición está muy lejos de cumplirse en una muestra bajo irradiación, en la que se desarrolla un importante gradiente térmico y en la que existe una distribución de tamaños de granos. Esto puede contribuir a los apartamientos mostrados. Esta limitación quedará eliminada cuando el modelo de densificación sea incorporado al programa DIONISIO, que será la próxima etapa de este trabajo.

En este código ya existe un modelo de formación de burbujas por los gases de fisión y de liberación de estos al volumen libre de la barra combustible. Se espera que la incorporación del modelo de densificación a DIONISIO contribuya una descripción cada vez más ajustada de los múltiples procesos que ocurren en una barra combustible de potencia bajo irradiación.

REFERENCIAS

- Assmann, H. and Stehle, H. Thermal and in-reactor densification of UO₂: Mechanisms and experimental results, *Nuclear Engineering and Design*, 48(1), pp. 49–67, 1978.
- Bouguerra, Y. and Si-Ahmed, A. A model for predicting evolution of pore size distributions in UO₂ fuel, *Journal of Nuclear Materials*, 178(2–3), pp. 300–305, 1991.
- Bouloré, A. Étude et modélisation de la densification en pile des oxydes UO₂ et MOX. Institut National Polytechnique de Grenoble, 2001.
- Brailsford, A. D. and Bullough, R. The Theory of Sink Strengths, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London - A*, 302, 1981.
- Dollins, C. C. In-pile densification of intergranular porosity in oxide fuels, *Journal of Nuclear Materials*, 82, pp. 494–500, 1993.
- Dollins, C. C. and Nichols, F. A. In-pile intragranular densification of oxide fuels, *Journal of Nuclear Materials*, 78(2), pp. 326–335, 1978.
- Freshley, M. D. *et al.* Irradiation-induced densification of UO₂ pellet fuel, *Journal of Nuclear Materials*, 62(2–3), pp. 138–166, 1976.
- Griesmeyer, J. M. and Ghoniem, N. M. A dynamic intragranular fission gas behavior model, *Journal of Nuclear Materials*, 55, pp. 69–95, 1979a.
- Griesmeyer, J. M. and Ghoniem, N. M. The response of fission gas bubbles to the dynamic behavior of point defects, *Journal of Nuclear Materials*, 80, pp. 88–101, 1979b.
- IAEA. Thermodynamics Vol. II, in *Thermodynamics*, 1966.
- Khvostov, G., Mikityuk, K. and Zimmermann, M. A. A model for fission gas release and gaseous swelling of the uranium dioxide fuel coupled with the FALCON code, *Nuclear Engineering and Design*. Elsevier B.V., 241(8), pp. 2983–3007, 2011.
- Kuganathan, N. *et al.* Fission gas in thoria, *Journal of Nuclear Materials*. Elsevier B.V, 485, pp. 47–55, 2017.
- Lindman, N. On the rate of in-reactor UO₂ densification, *Journal of Nuclear Materials*, 71, pp. 73–77, 1977.

- Matzke, H. Radiation enhanced diffusion in UO_2 and $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$, *Radiation Effects*, 75(1–4), pp. 317–325, 1983
- Olander, D. R. Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements, 1976.
- Ross, A. M. Irradiation behaviour of fission-gas bubbles and sintering pores in UO_2 , 30, pp. 134–142, 1969.
- Stehle, H. and Assmann, H. The Dependence of in-reactor UO_2 densification on temperature and microstructure, *Journal of Nuclear Materials*, 52, pp. 303–308, 1974.
- Stehle, H. and Assmann, H. In-Reactor UO_2 densification, *Journal of Nuclear Materials*, 61, pp. 326–329, 1976.
- Tarasov, V. I. and Veshchunov, M. S. Models for fuel porosity evolution in UO_2 under various regimes of reactor operation, *Nuclear Engineering and Design*. Elsevier B.V., 272, pp. 65–83, 2014.
- Tarasov, V. I. and Veshchunov, M. S. Modelling of as-fabricated porosity in UO_2 fuel by MFPR code, *EPJ Nuclear Sciences & Technologies*, 2, p. 19, 2016.
- Veshchunov, M. S. On the theory of fission gas bubble evolution in irradiated UO_2 fuel, *Journal of Nuclear Materials*, 277, 2000.
- Veshchunov, M. S. and Shestak, V. E. Model for evolution of crystal defects in UO_2 under irradiation up to high burn-ups, *Journal of Nuclear Materials*. Elsevier B.V., 384(1), pp. 12–18, 2009.
- Wolfer, W. G. On the coefficient interstitials for bulk recombination of vacancies and interstitials, *Computer*, 99, pp. 117–123, 1981.