

## MODELO DE CRECIMIENTO POR IRRADIACIÓN DE VAINAS EN COMBUSTIBLES NUCLEARES BAJO CONDICIONES NORMALES DE OPERACIÓN

### IRRADIATION GROWTH MODEL FOR NUCLEAR FUEL SHEATHS UNDER NORMAL OPERATION CONDITIONS

Martín A. Togneri<sup>a,b</sup>, Mauricio E. Cazado<sup>a,c</sup> y Alejandro Soba<sup>a,c</sup>

<sup>a</sup>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](mailto:cazado@cnea.gov.ar)

<sup>b</sup>Instituto de Tecnología Nuclear Dan Beninson, UNSAM/CNEA

<sup>c</sup>CONICET

**Palabras clave:** crecimiento por irradiación, aleaciones de zirconio, simulación numérica.

**Resumen.** Cuando los materiales a base zirconio se encuentran bajo irradiación se induce un crecimiento que genera cambios dimensionales. Predecir el comportamiento de estos materiales es necesario para poder determinar el tiempo máximo de operación requerido para evitar posibles problemas mecánicos, tales como pandeo de vainas, fisuras, contacto vaina-canal de refrigeración, etc. En este trabajo se presenta un modelo que permite calcular los cambios dimensionales a partir de la evolución de defectos microestructurales, por ejemplo, vacancias, intersticiales y dislocaciones. Los resultados preliminares obtenidos concuerdan razonablemente con datos experimentales.

**Keywords:** irradiation growth, zircaloy, numerical simulation.

**Abstract.** When zirconium-based materials work under irradiation conditions, some growth is induced that generates dimensional changes. Predicting the behavior of these materials is necessary in order to determine the maximum time of operation required to avoid possible mechanical problems, such as buckling of sheaths, cracks, contact sheath-cooling channel, etc. In this work a model is presented that allows calculating the dimensional changes starting from the evolution of microstructural defects such as vacancies, interstitials and dislocations. The preliminary results obtained are in reasonable agreement with experimental data.

## 1 INTRODUCCIÓN

Si bien las aleaciones de zirconio (Zr) son las más utilizadas como material estructural en los reactores nucleares, por sus buenas propiedades nucleares y mecánicas, uno de sus mayores inconvenientes es el alargamiento que presenta este metal al ser sometido a un campo de radiación neutrónica. El crecimiento inducido por irradiación en las aleaciones de Zr es un fenómeno que debe tenerse en cuenta durante el diseño del núcleo con el fin de mantener la integridad física del reactor, ya que, al sufrir cambios dimensionales sin esfuerzo externo, puede presentar problemas de estancamiento, o fracturas. Es por esto, que es importante contar con un código que permita predecir el crecimiento en función de las condiciones de operación y las propiedades del material.

Los modelos más difundidos y empleados para el cálculo del crecimiento por irradiación se basan en leyes empíricas sencillas, en general en función de la fluencia de neutrones rápidos, obtenidas a partir de la parametrización e interpolación de datos experimentales. Algunos modelos incluyen la dependencia del factor de textura ( $f$ ), la fracción del trabajado en frío ( $CW$ ) y la temperatura ( $T$ ) (Hagman y Reymann, 1979; Marino et al., 1996). Sin embargo, el uso de modelos empíricos tiene restricciones en cuanto al rango de validez de sus predicciones. En este trabajo, se presenta un modelo de crecimiento inducido por irradiación basado en la difusión de defectos puntuales y la generación de lazos de dislocaciones de intersticiales, alcanzando buenos resultados al comparar con datos experimentales.

## 2 ZIRCONIO Y SUS ALEACIONES

El zirconio es un metal de transición que se encuentra comúnmente en la forma de óxidos en los minerales zircón ( $ZrSiO_4$ ) y baddeleyita ( $ZrO_2$ ). Este metal posee alta dureza, ductilidad y resistencia a la corrosión. Por debajo de los 860 °C, se designa  $\alpha$ -Zr y corresponde a una estructura cristalina hexagonal compacta (HCP). El Zr presenta una baja sección eficaz de captura neutrónica (6.4 barns para  $E_n = 1$  MeV y 0.18 barns para  $E_n = 0.025$  eV) (Whitmarsh, 1962), la cual es una gran ventaja para la economía neutrónica de un reactor, ya que así, los neutrones térmicos interactúan preferentemente con el uranio para generar las fisiones, y se reduce la absorción por parte de la vaina.

Las aleaciones más utilizadas en la industria nuclear son: Zircaloy-2, Zircaloy-4 y Zr-2.5%Nb. En la [Tabla 1](#) se detalla la composición química de cada una de estas aleaciones (Whitmarsh, 1962).

	Zircaloy-2	Zircaloy-4	Zr-2.5%Nb
Sn	1.20 – 1.70	1.20 – 1.70	-
Fe	0.07 – 0.20	0.18 - 0.24	-
Cr	0.05 – 0.15	0.07 – 0.13	-
Ni	0.03 – 0.08	-	-
Nb	-	-	2.40 – 2.80

Tabla 1: Composición química de las aleaciones de zirconio utilizadas en la industria nuclear.

Estas aleaciones de Zr son utilizadas como material estructural en reactores nucleares. Particularmente, para vainas de elementos combustibles se utilizan las aleaciones de Zircaloy-2 o Zircaloy-4. La mayor diferencia entre estas dos aleaciones radica en una mejora tecnológica en cuanto a la resistencia a la corrosión, manteniendo las propiedades mecánicas. Para tubos guías de combustibles es común utilizar Zr-2.5%Nb.

Durante la fabricación de las vainas de combustibles nucleares por laminación, la textura cristalina se modifica para optimizar las propiedades mecánica y la orientación de los granos

quedan orientados de modo tal que el eje  $\langle c \rangle$  de la celda unidad se encuentra paralelo a la dirección radial, como se observa en

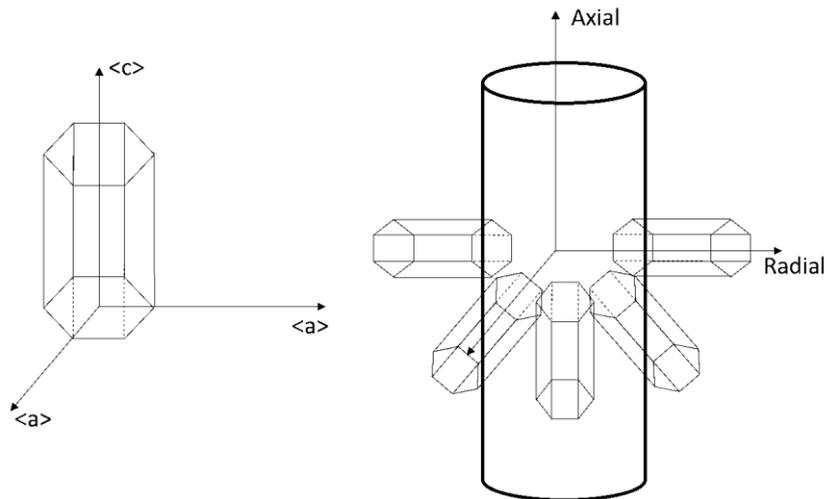


Figura 1: Orientación de la estructura hexagonal en una vaina de Zircaloy.

### 3 MODELO DE CRECIMIENTO INDUCIDO POR IRRADIACIÓN

El modelo propuesto en este trabajo se considera que cuando una aleación de Zircaloy es sometida a un flujo de neutrones rápidos ( $E_n > 1$  MeV), estos interactúan con la red cristalina del material produciendo desplazamientos solo de los átomos de Zr y que el resto de los aleantes no presentan una contribución significativa a ninguno de los fenómenos aquí involucrados. Estos desplazamientos producen pares de Frenkel, es decir vacancias e intersticiales en igual proporción. Una vacancia es la ausencia de un átomo en la red cristalina, mientras que un intersticial es un átomo ubicado en un sitio intersticial, es decir, fuera de una posición normal de la red. La tasa de producción de pares de Frenkel está dada por:

$$K = \Psi \times \phi \quad (1)$$

donde  $\Psi$  es una constante de ajuste cuyo valor es  $2.3 \times 10^{-25}$  [ $\text{m}^2/\text{s}$ ] y  $\phi$  es el flujo rápido en  $\text{n}/\text{cm}^2\text{s}$  (Sadaoka y Fuse, 1988).

Cuando alguno de estos defectos tiene energía suficiente para superar un determinado umbral y producir una distorsión momentánea de la red circundante, se produce la migración de los mismos. Los coeficientes de difusión de vacancias y de intersticiales para Zr son, respectivamente (Pedraza y Fainstein-Pedraza, 1980; Dollins, 1976):

$$D_v = 1.0 \times 10^{-6} \exp(-1.1 [\text{eV}]/kT) \quad (\text{m}^2/\text{s}) \quad (2)$$

$$D_i = 7.4 \times 10^{-8} \exp(-0.3 [\text{eV}]/kT) \quad (\text{m}^2/\text{s}) \quad (3)$$

donde,  $k = 8.61733 \times 10^{-5}$  [ $\text{eV}/\text{K}$ ] es la constante de Boltzmann y  $T$  es la temperatura absoluta

Los defectos puntuales pueden migrar por la red y si se encuentran algunos parámetros de red unos de otros, pueden recombinarse y aniquilarse. Entonces la tasa de recombinación entre vacancias e intersticiales está dada por:

$$Re_{vi} = \alpha C_v C_i \quad (4)$$

donde  $C_v$  y  $C_i$  son las concentraciones adimensionales de vacancias e intersticiales, respectivamente, y  $\alpha$  es el parámetro de recombinación que puede aproximarse por  $\alpha \cong$

$4\pi a(D_i + D_v)/\Omega$ , siendo el parámetro de red  $a = 3.232 \times 10^{-10}$ (m) y el volumen atómico  $\Omega = 2.328 \times 10^{-29}$ (m<sup>3</sup>).

Una vez generados los defectos puntuales por desplazamientos de los átomos de Zr al interactuar con el flujo neutrónico, una pequeña fracción  $\varepsilon$  de intersticiales pueden combinarse para formar lazos de dislocaciones con un radio mínimo ( $r_{lmin} = 10^{-9}$  (m)) que luego pueden cambiar sus dimensiones debido al flujo neto de defectos que se produce entre la red cristalina y los propios lazos. Por otro lado, las vacancias e intersticiales pueden recombinarse con las dislocaciones de bordes y los bordes de grano. Se debe tener en cuenta que una interacción entre una dislocación de borde o un lazo de dislocación con un intersticial es mayor que con una vacancia, debido a que el campo de tensiones alrededor de un intersticial es mayor. Este último efecto se tiene en cuenta en los factores *bias* que se describen a continuación (Dollins, 1976):

$$Z_v = 2\pi/\ln(r_{md}/3b) \quad (5)$$

$$Z_i = 2\pi/\ln(r_{md}/[3b + \Delta R]) \quad (6)$$

$$Z_{vl} = 2\pi/\ln(8r_l/3b) \quad (7)$$

$$Z_{il} = 2\pi/\ln(8r_l/[3b + \Delta R]) \quad (8)$$

donde el subíndice “l” indica lazo de dislocación,  $r_{md}$  es la distancia media entre dos dislocaciones,  $r_l$  es el radio de un lazo de dislocación,  $b = 3.232 \times 10^{-10}$ (m) y  $\Delta R$  da cuenta de la distancia adicional de interacción del campo elástico producido por un intersticial con respecto a una vacancia, tal que:

$$\Delta R = 0.014ba^3\mu/k_bT \quad [\text{m}] \quad (9)$$

donde  $k_b = 1.3806 \times 10^{-23}$ J/K.

La distancia media entre dislocaciones se puede aproximar como:

$$r_{md} \cong (\pi\rho_t)^{-1/2} \quad [\text{m}] \quad (10)$$

$$\rho_t = \rho + \rho_l \quad [\text{m}^{-2}] \quad (11)$$

donde  $\rho_t$ ,  $\rho$  y  $\rho_l$  son las densidades de dislocaciones total, de borde y de lazos, respectivamente.

Para poder describir el crecimiento inducido por irradiación es necesario conocer cómo evolucionan las concentraciones de defectos puntuales. Para ello se considera que la concentración de vacancias e intersticiales varía en el tiempo, pero no espacialmente en un grano del material. A partir de los modelos propuesto por Dollins (1976), Fainstrein-Pedraza et al. (1978) y Choi et al. (2016), y de las consideraciones anteriores, se obtuvieron las siguientes ecuaciones para determinar la evolución temporal de vacancias e intersticiales:

$$\frac{dC_v}{dt} = K - Re_{vi} - (Z_v\rho D_v + K_{bgv}D_v) \times (C_v - C_v^{eq}) - Z_{vl}\rho_l D_v (C_v - C_v^{eq} f_{el}) \quad (12)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = K(1 - \varepsilon) - Re_{vi} - K_i D_i C_i \quad (13)$$

Donde  $K_i$  es la probabilidad de captura de intersticiales por todos los sumideros,  $K_{bgv}$  es la probabilidad de captura de vacancias por borde de grano,  $C_v^{eq}$  es la concentración de vacancias en equilibrio termodinámico, dada por  $C_v^{eq} = \exp(-1.2 [eV]/kT)$  y  $f_{el}$  es un parámetro geométrico que depende de las constantes elásticas del material y del tamaño de un lazo de

dislocación, que mide cómo afectan estas propiedades en la concentración en equilibrio termodinámico alrededor de dicho lazo. De acuerdo con (Dollins, 1976; Fainstrein-Pedraza et al., 1978):

$$f_{el} = \exp\left(-\frac{\frac{-\mu b^4}{4\pi(1-\nu)} \ln\left(\frac{r_l + b}{b}\right)}{(b + r_l)kT}\right) \quad (14)$$

$$\varepsilon = \frac{dN_l}{dt} \pi r_{l0}^2 \quad (15)$$

$$N_l = \frac{N_0}{(1 + F)} \log_{10}(51kT + 1) \quad (16)$$

$$F = \frac{7.2 \times 10^{18}}{\exp(27660/T)} \quad (17)$$

donde  $N_l$  es el número de lazos de dislocaciones por unidad de volumen,  $r_{l0}$  es el radio inicial de un lazo y  $N_0$  es un parámetro de ajuste del modelo.

Para el cálculo de los factores de recombinación en borde de grano y total se realizó a partir de:

$$K_{bg_{i,v}} = \frac{6}{d_g} \sqrt{Z_{i,v}\rho + Z_{l_{i,v}}\rho_l} \quad (18)$$

$$K_{i,v} = Z_{i,v}\rho + Z_{l_{i,v}}\rho_l + K_{bg_{i,v}} \quad (19)$$

Una vez formados los lazos de dislocaciones, estos tienen la posibilidad de cambiar su tamaño debido al intercambio neto de defectos puntuales que se establece entre el lazo y la red cristalina. De acuerdo con (Dollins, 1976), la tasa de cambio del radio de lazo es:

$$\frac{dr_l}{dt} = \frac{1}{b} [Z_{li}D_iC_i - Z_{lv}D_v(C_v - C_v^{eq}f_{el})] + \frac{\varepsilon K}{\rho_l} \quad (20)$$

A partir de datos experimentales para Zircaloy-2 (Woo, 1998; Northwood et al., 1975), se realizaron ajustes paramétricos para obtener la densidad de dislocaciones de borde, el módulo de corte y el coeficiente de Poisson:

$$\rho = 9.55 \times 10^{11} + 9.98 \times 10^{13} \ln(\%CW + 1.135) \quad [\text{m}^{-2}] \quad (21)$$

$$\mu = 3.9 \times 10^{10} - 1.2 \times 10^7 T - 7.34 \times 10^3 T^2 \quad [\text{Pa}] \quad (22)$$

$$\nu = 0.376 - 1.93 \times 10^{-5} T - 5.10 \times 10^{-8} T^2 \quad (23)$$

La tasa de deformación total del material ( $\varepsilon_{tot}$ ) presenta tres contribuciones: por trepado de las dislocaciones de borde ( $\varepsilon_d$ ), por cambio dimensional y de concentración de los lazos de dislocaciones ( $\varepsilon_l$ ) y por recombinación de defectos en bordes de granos ( $\varepsilon_{bg}$ ). Esto es:

$$\frac{d\varepsilon_{tot}}{dt} = (1 - 3f) \times \left( \frac{d\varepsilon_d}{dt} + \frac{d\varepsilon_l}{dt} + \frac{d\varepsilon_{bg}}{dt} \right) \quad (24)$$

$$\frac{d\varepsilon_d}{dt} = \frac{\rho}{2} [Z_i D_i C_i - Z_v D_v (C_v - C_v^{eq})] \quad (25)$$

$$\frac{d\varepsilon_l}{dt} = \pi b N_l r_l^2 \quad (26)$$

$$\frac{d\varepsilon_{bg}}{dt} = \frac{1}{6} [K_{bg_i} D_i C_i - K_{bg_v} D_v (C_v - C_v^{eq})] \quad (27)$$

donde  $f$  es el factor de Kearns o factor de textura para la dirección de interés.

#### 4 RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Las ecuaciones diferenciales acopladas propuestas en este trabajo no tienen solución analítica, por lo que se debe recurrir al empleo de algún método numérico capaz de resolverlas. Para las ecuaciones de la tasa de concentraciones de defectos como para la tasa de crecimiento se utilizó el método de cálculo de Euler indirecto, mientras que para el cálculo del crecimiento del radio de loop se utilizó el método de Runge-Kutta de cuarto orden (Chapra, 2015). Todos los modelos han sido desarrollados en un entorno de programación matemático específico, para posteriormente exportarlos a FORTRAN 90 y ser incluidos en el código DIONISIO (Soba y Denis, 2015).

Los resultados analizados que se presentan a continuación refieren a una serie de experimentos bajo irradiación controlados, realizados sobre Zircaloy-2 con distintos recocidos y/o con distintos trabajados en frío (Cold Working).

En la [Tabla 2](#) se presentan los experimentos y las condiciones analizadas en este trabajo.

Exp. id	Temp. (K)	Fluencia (n/m <sup>2</sup> )	CW(%)	Factor textura
L2D	573	87.7E+24	25	0.1
L10L	573	18.9E+24	25	0.1
L10N	573	11.3E+24	25	0.1
L10J	633	19.2E+24	25	0.1
L10K	633	32.1E+24	25	0.1
L10G	673	29.6E+24	25	0.1
L10H	673	18.7E+24	25	0.1
A18L	353	17.3E+25	0	0.1
A9L	553	11.1E+25	0	0.1
A53	573	34.2E+24	0	0.1
A56	573	31.6E+24	0	0.1
A52	633	58.3E+24	0	0.1
A55	633	55.1E+24	0	0.1

Tabla 2: Experimentos analizados en este trabajo tomados de Rogerson (1988)

##### 4.1 Simulación para aleaciones trabajadas en frío

En esta sección se han seleccionado los datos experimentales de Zircaloy-2 trabajados en frío (Rogerson, 1988) llevados a cabo en el reactor EBR-II. Para cada una de las temperaturas experimentales se ha realizado una simulación con el modelo propuesto en este trabajo, ingresando todos los parámetros de entrada característicos de cada aleación.

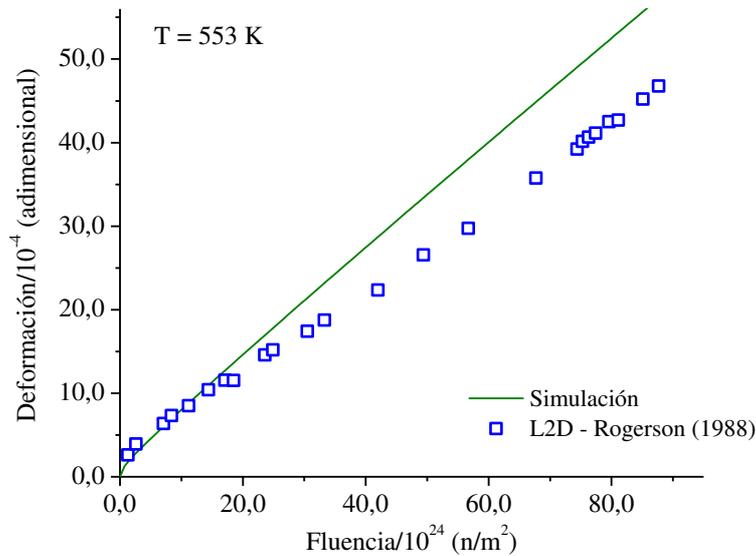


Figura 1: Datos experimentales L2D a 553 K y simulación

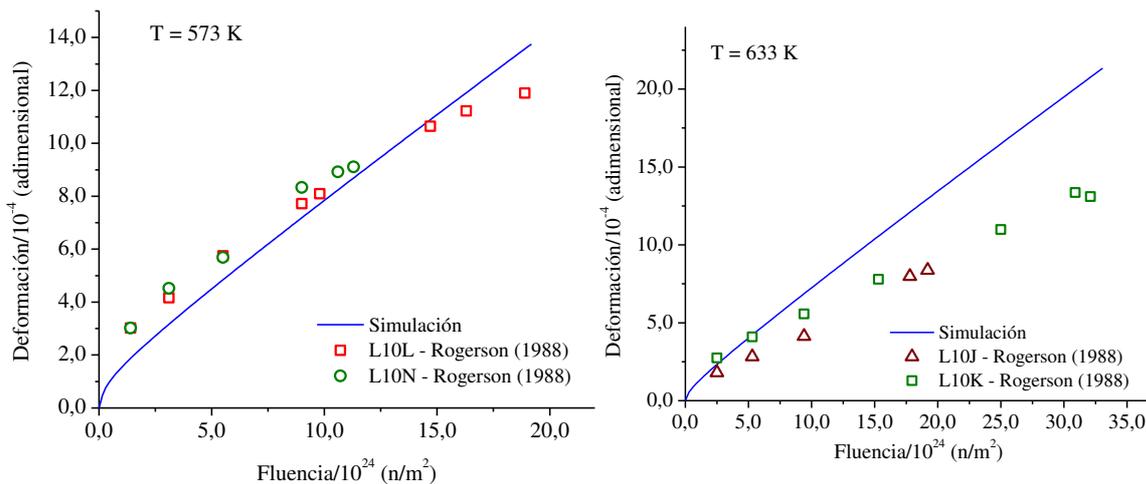


Figura 2: Datos experimentales L10L/L10N a 573 K (izquierda) y L10J/L10K a 633 K (derecha) y las correspondientes predicciones del modelo.

En las [Figura 1](#), [2](#) y [3](#) se presentan los resultados correspondientes a todos los experimentos realizados con muestras que fueron sometidas a un porcentaje de trabajado en frío. Los mismos se realizaron para diferentes fluencias y temperaturas.

En el caso de las muestras L2D la simulación concuerda con los datos experimentales hasta una fluencia de  $20 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ , a partir de la cual el crecimiento comienza a disminuir linealmente en una pendiente diferentes a la predicha con nuestro modelo. A pesar de esta desviación se observa que el error relativo entre el modelo y los datos experimentales es menor al 15 %.

En los experimentos correspondientes a temperaturas más cercanas a las de operación de un reactor de potencia tipo PHWR., como los presentados en las [Figura 2](#) y [3](#) se observa que el modelo están dentro de los órdenes de magnitud de los datos experimentales, aunque la simulación presenta una sobreestimación a partir de una fluencia de  $5.0 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$  para las muestras a 633 K. El error relativo observado es menor al 25 %.

Finalmente, para el experimento L10G y L10H, ambos realizados a 673 K de temperatura, la simulación es consistente con los datos experimentales para los dos especímenes.

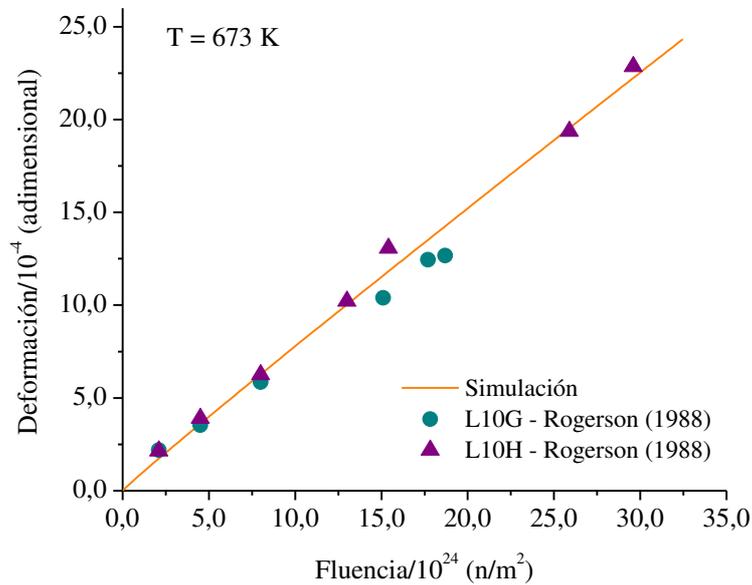


Figura 3: Datos experimentales L10H y L10G a 673 K y simulación

#### 4.2 Simulación para aleaciones recocidas

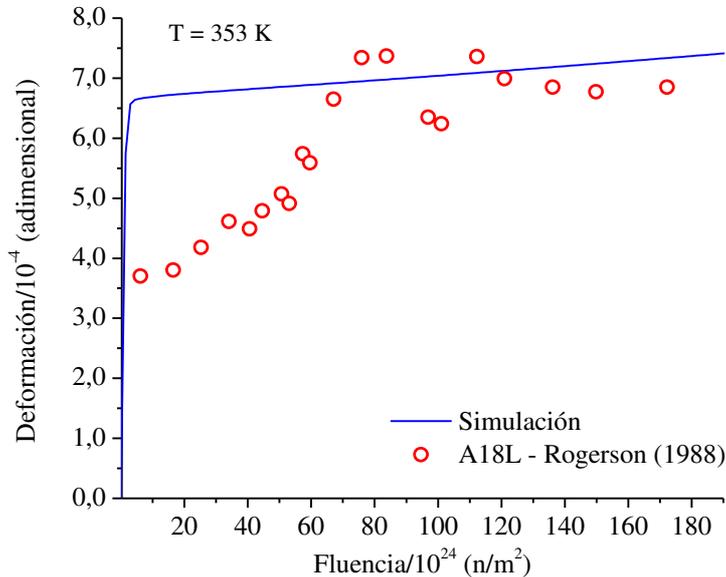


Figura 4: Datos experimentales A18L a 353 K y simulación.

En la Figura 4 se observa el comportamiento de la deformación con la fluencia para Zircaloy-2 para 353 K. Se puede notar que a aproximadamente  $80 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$  se alcanza un nivel de saturación, sin haber llegado a la etapa de *breakaway*. Si bien la simulación no presenta una muy buena descripción, el orden de magnitud y el comportamiento es consistente con los datos experimentales.

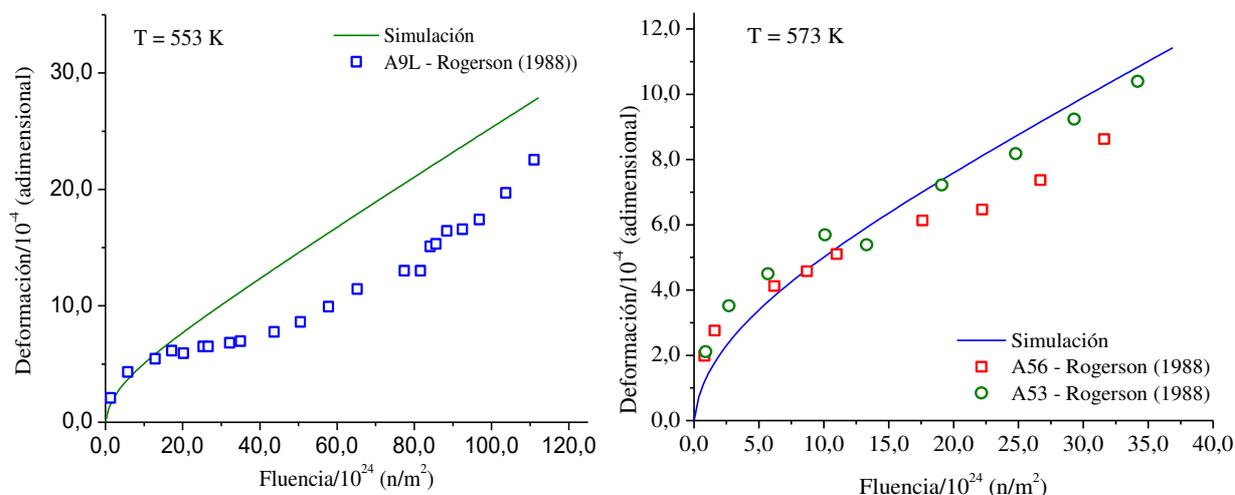


Figura 5: Datos experimentales para los especímenes A9L (izquierda) A53/A56 (derecha) y las respectivas predicciones del modelo.

En la [Figura 5](#) se presentan los resultados correspondientes a los especímenes A9L (553 K), A53 y A55 (573 K) en función de la fluencia. Para la muestra A9L la simulación tiene desviaciones respecto de datos experimentales, sin embargo, se encuentra dentro del orden de magnitud del crecimiento. Para las muestras a 573 K la predicción numérica muestra un buen acuerdo con las medidas experimentales.

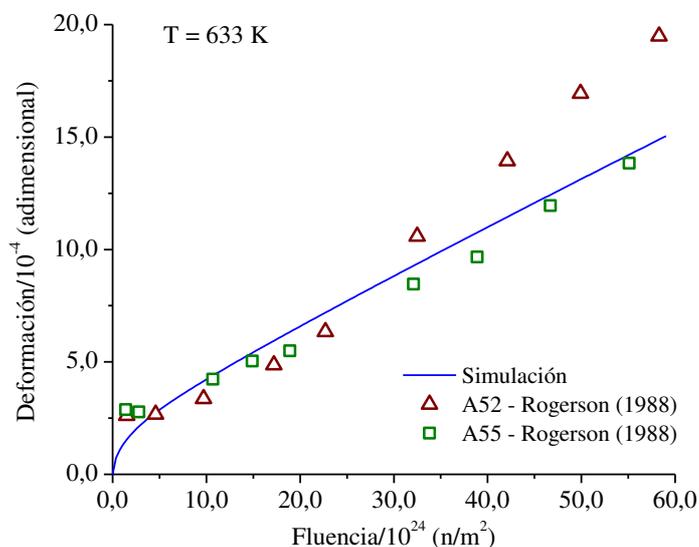


Figura 6: Datos experimentales A52 y A55 a 633 K y simulación.

En la [Figura 6](#) se grafica la comparación entre datos experimentales y simulación en función de la fluencia para muestras irradiadas a una temperatura de 633 K. El modelo presenta un ajuste consistente con los datos del espécimen A55. No obstante, presenta un desvío con el espécimen A52. A pesar de las desviaciones mostradas, la simulación está en el rango de los valores experimentales.

## 5 CONCLUSIONES

En este trabajo se presentó un modelo para el cálculo del crecimiento inducido por irradiación aplicable a vainas de Zircaloy para elementos combustibles de reactores nucleares de potencia. El modelo propone un análisis microscópico de la interacción de los neutrones rápidos ( $E > 1$  MeV) con la red cristalina de una vaina de Zircaloy.

Este modelo ha sido programado en un entorno matemático y contrastado con datos experimentales para probar su desempeño, y en términos generales, para Zircaloy-2, tanto trabajado en frío como para recocido, a las temperaturas normales de operación de un reactor nuclear, el modelo presenta resultados consistentes con las mediciones experimentales.

En una segunda etapa el modelo será incorporado al código de combustible DIONISIO para ser testado en situaciones experimentales más realistas, contra irradiaciones llevadas a cabo en zircaloy formando parte estructural de elementos combustibles en reactores de potencia.

## REFERENCIAS

- Chapra, S., *Numerical methods for engineers*, McGraw-Hill 2015.
- Choi, S. I. et al., Modeling of sink-induced irradiation growth of single-crystal and polycrystal zirconium in nuclear reactors. *Journal of Nuclear Materials*, 468:56-70, 2016
- Dollins, C. C., In-pile dimensional changes in neutron irradiated zirconium base alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 59:61-76, 1976.
- Fainstein-Pedraza, D., Savino E. J. and Pedraza, A. J., Irradiation growth of zirconium-base alloys: Part I. *Journal of Nuclear Materials*, 73:151-168, 1978.
- Hagrman, D.L., and Reymann, G.A., *MATPRO-Version 11: a handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior*. United States: N. p., 1979
- Haynes, W. M., *Handbook of Chemistry and Physics*, CRC Press, 2014
- Marino, A. C., Savino, E. J. and Harriague, S., BACO (BARRA COMBUSTIBLE) code version 2.20: a thermos-mechanical description of a nuclear fuel rod. *Journal of Nuclear Materials*, 229:155-168, 1996.
- Northwood, D.O., London, I. M. and Bahen, L. E., Elastic constants of zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 55:229-310, 1975
- Pedraza, A. J. and Fainstein-Pedraza, D., Irradiation growth of zirconium-base alloys: II. Annealed material. *Journal of Nuclear Materials*, 88:236-248, 1980.
- Rogerson, A, Irradiation growth in annealed and 25% cold-worked zircaloy-2 between 353-673 K *Journal of Nuclear Materials* Volume 154, Issues 2-3, 1988.
- Sadaoka, N. and Fuse, M., Effects of microstructural factors on irradiation growth in zirconium-base alloys. *Transactions of the Japan Institute of Metals*, 29:970-976, 1988
- Soba, A. and Denis, A., DIONISIO 2.0: New version of the code for simulating a whole nuclear fuel rod under extended irradiation. *Journal of Nuclear Materials*, 292:213-221, 2015
- Whitmarsh, C L. *Review of zircaloy-2 and zircaloy-4 properties relevant to N.S. Savannah reactor design*, 1962.
- Woo, C. H., Modeling irradiation growth of zirconium and its alloys. *Radiations Effects and Defects in Solids: Incorporating Plasma Science and Plasma Technology*, 144:1-4,145-169, 1998