

MODELADO DE MATERIALES PARA COMBUSTIBLES DE TECNOLOGÍA AVANZADA

MODELING OF MATERIALS FOR ADVANCED TECHNOLOGY FUELS

Matías E. Loza Peralta^{a,b}, Martín Lemes Lapasta^b, Edgar A. Bea^{b,c} y Alejandro Soba^{b,c}

^aSección Códigos y Modelos, Gerencia Ciclo del Combustible Nuclear, CAC, CNEA, Av. Gral. Paz
1499, 1650 Buenos Aires, Argentina, loza@cnea.gov.ar, lemes@cnea.gov.ar, soba@cnea.gov.ar

^bInstituto Sábato, UNSAM - CNEA

^cCONICET

Palabras clave: elementos finitos, barras combustibles, ATF, FeCrAl, DIONISIO.

Resumen. Con el objetivo de aumentar la seguridad en reactores de potencia se están desarrollando combustibles nucleares que amplíen los márgenes de tiempo requeridos para accionar los sistemas de protección ante eventos y/o accidentes. Con respecto a las vainas, uno de los materiales más estudiados para reemplazar a las aleaciones de base Zr es el FeCrAl. Así mismo se analizan vainas de Zircaloy-4 recubiertas por cromo o níquel, entre otras alternativas. En cuanto al material físil propiamente dicho, una de las propuestas más prominentes es la el UO₂ dopado con cromo. Desde la Sección Códigos y Modelos, se participa en dichos esfuerzos buscando adaptar el código DIONISIO, que simula el comportamiento de barras combustibles, tanto en condiciones normales de operación como en condiciones de accidente, con la inclusión de nuevas librerías para materiales tecnológicamente avanzados (ATF). Este trabajo busca mostrar el avance en la inclusión de las nuevas librerías y analizar el comportamiento de estos materiales a través de las comparaciones con benchmarks y resultados experimentales.

Keywords: Finite elements, fuel rods, ATF, FeCrAl, DIONISIO.

Abstract. With the aim of increasing safety in power reactors, nuclear fuels are being developed that extend the time margins required to activate protection systems against events and/or accidents. With regard to sheaths, one of the most studied materials to replace Zr-based alloys is FeCrAl. Likewise, Zircaloy-4 sheaths coated with chrome or nickel, among other alternatives, are analyzed. As for the fissile material itself, one of the most prominent proposals is that of chromium-doped UO₂. The Codes and Models Section participates in these efforts seeking to adapt the DIONISIO code, which simulates the behavior of fuel rods, both under normal operating conditions and under accident conditions, with the inclusion of new libraries for Advance technological fuels (ATF). This work seeks to show the progress in the inclusion of the new libraries and analyze the behavior of these materials through comparisons with benchmarks and experimental results.

1. INTRODUCCIÓN

Desde hace unas décadas la industria nuclear busca diseñar nuevos reactores nucleares de mayor eficiencia termodinámica, así como con mayor seguridad de funcionamiento. Para estos reactores de la denominada Generación IV se requieren nuevos materiales que mantengan la integridad de los EECC (elementos combustibles) durante el mayor tiempo posible frente a un evento de accidente. De esta forma, estos nuevos materiales permiten que los sistemas de seguridad de un reactor nuclear tengan mayor tiempo para activarse en dichos casos y así evitar accidentes severos en el núcleo del reactor. Estos nuevos materiales dieron lugar a un nuevo concepto de combustibles denominados de tecnología avanzada o combustibles tolerantes a accidentes (ATF, por sus siglas en inglés) [Pasamehmetoglu \(2018\)](#). A nivel internacional, se están realizando esfuerzos para desarrollar herramientas de simulación de performance de combustibles que contengan dichos materiales, dentro de los cuales está el proyecto ATF-TS (Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels) del Organismo Internacional de Energía Atómica [IAEA \(2018\)](#). Este proyecto es la confluencia de dos proyectos previos denominados FUMAC y ACTOF. El primero buscó analizar el comportamiento del combustible frente a eventos de accidente mediante la modelización; el segundo, proveyó la información sobre las diferentes opciones de materiales ATF a los distintos países miembros. De manera similar, el proyecto ATF-TS busca comprender y abordar diferentes factores que afectan el diseño, la fabricación y el comportamiento del combustible en operación, como así también, los materiales nucleares innovadores utilizados en la actualidad en reactores de potencia, con el fin de aumentar la disponibilidad tecnológica de materiales candidatos a ATF.

Desde la Sección Códigos y Modelos, se participa en dichos esfuerzos buscando adaptar el código DIONISIO, que simula el comportamiento de barras combustibles, tanto en condiciones normales de operación como en condiciones de accidente [E. Goldberg \(2019, 2021\)](#) con la inclusión de nuevas librerías para materiales ATF, que junto a un reciente módulo de evolución de fisuras en la vaina, permite reproducir experimentos diseñados para estudiar fenómenos como el englobamiento de la vaina “balloning” y la explosión “burst”, el cual puede observarse en la Figura 1. En el marco de la inclusión de librerías para ATF en DIONISIO, se han desarrollado, hasta el momento modelos de combustibles basados en óxidos de torio [M. E. Loza Peralta \(2021\)](#), un posible candidato como alternativa al dióxido de uranio en reactores de Generación IV, modelos para Zr1 %Nb y Acero para las vainas. Dentro de las propuestas de materiales para las vainas, se encuentran las aleaciones de hierro, cromo y aluminio conocidas como Fe-CrAl. Comparadas con las aleaciones de circonio, estas aleaciones tienen mejores propiedades mecánicas (rigidez, resistencia mecánica, ductilidad, entre otras) y menor oxidación a alta temperatura (espesores de un orden de magnitud en condiciones de accidente, y tres órdenes de magnitud en condiciones de accidentes LOCA). Entre las desventajas de estas aleaciones frente a las de circonio podemos mencionar la menor temperatura de fusión, mayor sección eficaz captura neutrónica y mayor permeabilidad del tritio.

Este trabajo está estructurado de la siguiente manera: en la sección 2 se presentan los modelos de FECRAI introducidos en el código. En la sección 3 se presentan los benchmarks y experimentos realizados como testeo. En la sección 4 se presentan algunos resultados de barras completas y experimentos complejos. Finalmente, en la última sección se añaden ciertas conclusiones.

2. MODELADO DE PROPIEDADES DEL FECRAL

2.1. Modelos de propiedades termomecánicas

Pastore et al. (2017) presentan diferentes modelos para las principales propiedades termomecánicas y de irradiación, entre ellas: módulo de Young, módulo de Poisson, tensión de fluencia, fluencia a alta temperatura, fluencia por irradiación e hinchamiento. Estas mismas se pueden observar en la Tabla 1 donde T_c y T son las temperaturas en $^{\circ}C$ y en K respectivamente, ϵ es la velocidad de deformación, σ_{eff} es la tensión efectiva de Von Mises, y ϕ_{fast} y Φ_{fast} son el flujo y la fluencia de neutrones rápidos.

Propiedades	Modelos Matemáticos
Módulo de Young	$E = 5,46 \cdot 10^{-5} \cdot T_c^2 + 3,85 \cdot 10^{-2} \cdot T_c + 1,99 \cdot 10^2$
Módulo de Poisson	$\nu = 3,85 \cdot 10^{-5} \cdot T + 2,68 \cdot 10^{-1}$
Tensión de fluencia	$\sigma_Y = \begin{cases} -2,22 \cdot 10^{-6} \cdot T^3 + 4,05 \cdot 10^{-3} \cdot T^2 - 2,70 \cdot T + 9,45 \cdot 10^2 & si T < 1007K \\ 1,15 \cdot 10^{-4} T^2 + 4,05 \cdot 10^{-1} \cdot T + 3,59 \cdot 10^2 & si T \geq 1007K \end{cases}$
Fluencia a alta temperatura	$\dot{\epsilon} = \begin{cases} 2,89 \cdot 10^{-25} \cdot \sigma_{eff}^{5,5} \cdot \exp\left(\frac{-29709}{T}\right) & si T \leq 873K \\ 5,96 \cdot 10^{-16} \cdot \sigma_{eff}^{5,5} \cdot \exp\left(\frac{-47136}{T}\right) & si T > 873K \end{cases}$
Fluencia por irradiación	$\dot{\epsilon} = 4,5 \cdot 10^{-33} \cdot \sigma_{eff} \cdot \phi_{fast}$
Hinchamiento	$\epsilon = 1,5 \cdot 10^{-25} \cdot \Phi_{fast}$

Tabla 1: Modelos propiedades termomecánicas

2.2. Modelos de propiedades termofísicas

De acuerdo con Pastore et al. (2017), la conductividad térmica puede expresarse como:

$$\kappa = -2,9216 \cdot 10^{-8} \cdot T_c^2 + 1,9377 \cdot 10^{-4} \cdot T_c + 0,1007 \quad (1)$$

Por su parte, se tomó el coeficiente de expansión térmica de las especificaciones de producto de KANTHAL (2021) y se trabajó los valores como enseña Niffenegger y Reichlin (2012) y se obtuvieron diferentes valores de expansión térmica de acuerdo como indica la Tabla 2:

2.3. Modelos de oxidación de la vaina

La cinética de algunos procesos de oxidación, como el de las aleaciones de FeCrAl, presentan la ley descrita por Field et al. (2018):

$$\Delta m = \Delta m_0 + \sqrt{k} \cdot \sqrt{t} \quad (2)$$

donde Δm es la ganancia de masa por unidad de área, Δm_0 es una constante, k es la constante parabólica de oxidación y t es el tiempo. Para incluirlo en DIONISIO, el incremento $\Delta m_{\Delta t}$ en

Rango de Temperatura (°C)	Coficiente de Expansión Térmica ($10^{-6}/K$)
20 - 250	12.4
250 - 500	13.744
500 - 750	14.56
750 - 1000	17.912
1000 - 1200	18.83

Tabla 2: Coficiente de expansión termica de la aleación *KANTHALAPMTTM* para distintos rangos de temperatura

un paso de tiempo Δt se obtiene por derivación:

$$\Delta m_{\Delta t} = \frac{\sqrt{k} \cdot \Delta t}{\sqrt{t}} \quad (3)$$

Para evaluar el espesor del óxido, la ganancia de masa tiene que dividirse por la densidad de oxígeno en el óxido ρ_{ox} :

$$\delta = \frac{k \cdot \sqrt{t}}{\rho_{ox}} \quad (4)$$

Para simularlo en DIONISIO, se requiere el incremento $\Delta\delta$ en un paso de tiempo Δt . Por lo tanto, este incremento puede ser calculado como:

$$\Delta\delta = \frac{k \cdot \Delta t}{\rho_{ox} \cdot \sqrt{t}} \quad (5)$$

2.3.1. Oxidación en Condiciones Normales de Operación

La evolución del espesor del óxido δ en aleaciones FeCrAl expresadas en *cm*, de acuerdo con Pastore et al. (2017), pueden ser descritas por las Ecuaciones 4 y 5, donde δ está expresado en *cm*, t en *días*, $\rho_{ox} = 1,44 \frac{g}{cm^3}$ y \sqrt{k} expresada en $\frac{g}{cm^2 \cdot \sqrt{dia}}$ es:

$$\sqrt{k} = \begin{cases} 1,94 \cdot 10^{-5} & \text{for PWR} \\ 2,2094 \cdot 10^{-5} & \text{for BWR} \end{cases} \quad (6)$$

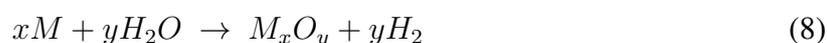
2.3.2. Oxidación a Alta Temperatura

Para la oxidación a alta temperatura, se tuvieron en cuenta las Ecuaciones 3 y 5. Para eso, $\Delta m_{\Delta t}$ está expresada en $\frac{g}{cm^2}$, $\Delta\delta$ en *cm*, Δt y t en *s*, $\rho_{ox} = 1,44 \frac{g}{cm^3}$, y para k , la constante de la aleación B136Y expresada en $\frac{g^2}{cm^4 \cdot s}$, de acuerdo con el IAEA-TECDOC-1921 (IAEA, 2020) y Kim et al. (2021), se modela como:

$$k = \begin{cases} 9,62 \cdot 10^{-12} & \text{si } T \leq 1473K \\ 3 \cdot 10^9 \cdot \exp\left(-\frac{594354}{R \cdot T}\right) & \text{si } 1473 < T \leq 1648K \\ 2,4106 \cdot 10^6 \cdot \exp\left(-\frac{352513}{R \cdot T}\right) & \text{si } 1648 < T < 1723K \\ 4,57 \cdot 10^7 \cdot \exp\left(-\frac{352513}{R \cdot T}\right) & \text{si } T > 1723K \end{cases} \quad (7)$$

donde R es la constante de los gases ideales en $\frac{J}{K \cdot mol}$ y T es la temperatura en K.

La oxidación a alta temperatura se tiene en cuenta para evaluar la liberación de H_2 en condiciones LOCA. La proporción de generación de masa entre las masas del nuevo óxido y del hidrógeno es 8:1. Esto se puede derivar de la proporción másica molecular $M_{especie}$ considerando la ecuación de la reacción de oxidación (Kim et al., 2021):



$$\Delta m_{oxido} : \Delta m_{H_2} = \frac{1}{2}M_{O_2} : M_{H_2} \approx 8 : 1 \quad (9)$$

3. BENCHMARKS Y EXPERIMENTOS

3.1. Benchmark para condiciones normales de operación

Para comparar el comportamiento de las aleaciones de zirconio frente a aleaciones de FeCrAl en condiciones normales, se propuso un *benchmark* con una historia de potencia simplificada como se muestra en la Fig. 1 donde la potencia lineal en estado estacionario es de 250 W/cm (Pastore et al., 2017). Se ejecutó la misma historia para dos barras combustibles con diez pastillas de UO_2 cada una y vainas, una de Zircaloy-4 (Zry-4) y otra de FeCrAl. Dado que la vaina de FeCrAl tiene mayor resistencia y mayor sección de captura neutrónica que el FeCrAl se disminuyó el espesor de la misma y se mantuvo el tamaño del gap aumentando el diámetro de la pastilla. Los diámetros de la vaina interno/externo fueron para el Zry-4 8,35/9,5 mm y para el FeCrAl 8,73/9,5 mm. Por su parte, los diámetros de las pastillas eran 8,19 mm para el Zry-4 y 8,57 mm para el FeCrAl. La longitud de las pastillas para ambas configuraciones fue de 11,86 mm (Pastore et al., 2017).

3.2. Benchmarks de experimentos PUZRY

Para estudiar los parámetros de explosión de las vainas en condiciones LOCA en aleaciones de circonio se diseñaron los experimentos PUZRY (Pastore et al., 2017). Los mismos se llevaron a cabo por AEKI (Atomic Energy Research Institute, Hungría). Consistían en vainas de aleaciones de circonio en un entorno sin irradiación sometidas a un aumento constante de presión hasta generar la explosión de la vaina en condiciones isotérmicas entre 700 y 1200 °C. Los especímenes de ensayo tenían 50 mm de largo, y diámetros interno y externo de 9,3 y 10,75 mm. Las mismas eran presurizadas con Ar para evitar la corrosión. En la Figura 2 se puede observar el dispositivo experimental del ensayo PUZRY.

Con el fin de estudiar los parámetros de explosión de vainas de FeCrAl en condiciones LOCA, se simuló los experimentos PUZRY suponiendo que las vainas de los mismos eran de FeCrAl. Para tener en cuenta los parámetros de diseño de las vainas FeCrAl se disminuyó el

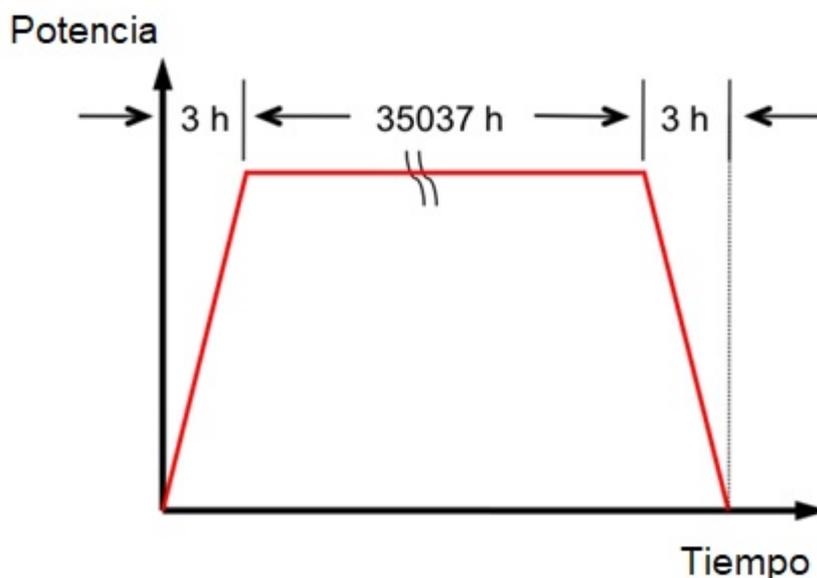


Figura 1: Historia de potencia para el caso de *benchmark* en operación normal (Pastore et al., 2017)

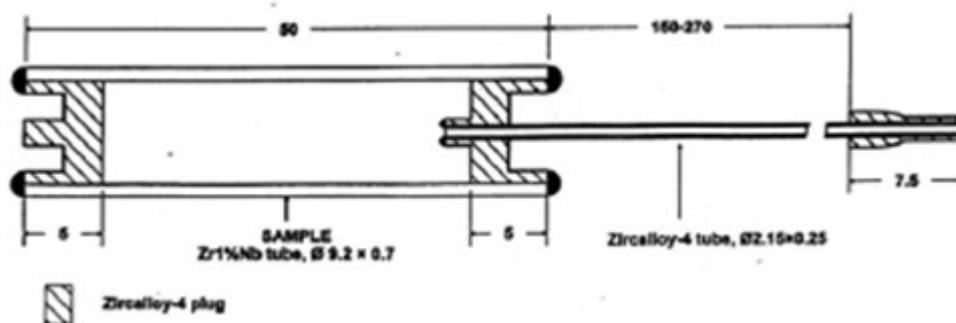


Figura 2: Dispositivo experimental de ensayos PUZRY (Pastore et al., 2017)

espesor del tubo aprovechando la mayor resistencia mecánica y buscando disminuir la captura de neutrones. Es así que el diámetro interno pasó a ser de 9,98 mm.

Para simular estos experimentos, DIONISIO cuenta con un módulo de ejecución para experimentos sin irradiación. Este módulo cuenta con una malla tridimensional con elementos cohesivos. En la Figura 3 se puede observar que la mayoría de los resultados presentan un error del 10 %.

3.3. Experimento termohidráulico sin irradiación

Para simular la termohidráulica de un accidente LOCA, el Instituto de Tecnología Karlsruhe (KIT) diseñó una serie de experimentos en que se estudian las condiciones de daño severo en las vainas de los elementos combustibles y la generación de hidrógeno. El experimento consistía en un manojo de 24 barras simuladas de FeCrAl que contaban con una resistencia interna. El mismo era sometido a la convección forzada de Ar y vapor sobrecalentado que reaccionaba con la vaina produciendo óxido e hidrógeno. Las vainas medían 2,28 m de longitud y presentaban una zona calentada con la resistencia de poco más de 1 m. El dispositivo contaba con varias

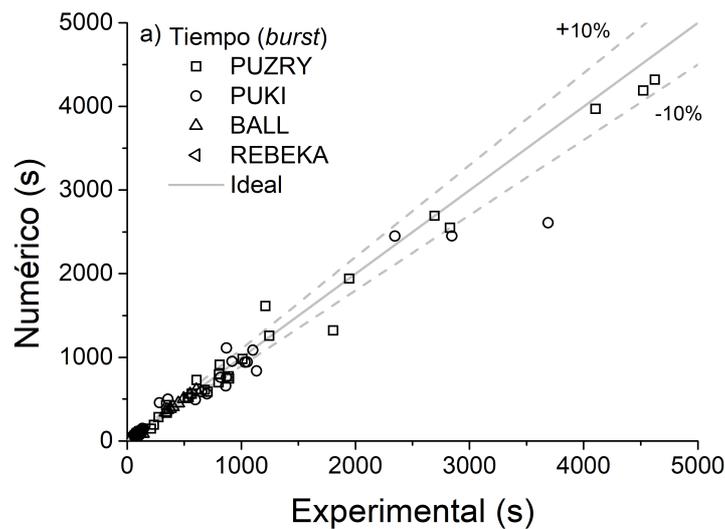


Figura 3: Resultados de tiempos de explosión de distintos experimentos sin irradiación

termocuplas ubicadas sobre las barras a diferentes alturas de las mismas. También contaba con un medidor de hidrógeno a la salida del flujo del Ar y el vapor que arrastraban el producto de la reacción con la vaina. Mediante un condensador extraían el vapor sobrecalentado, y quedaba el Ar y el hidrógeno por lo que el sistema de medición analizaba la mezcla binaria de ambos compuestos.

4. RESULTADOS

4.1. Benchmark para condiciones normales de operación

Los resultados del cálculo del *benchmark* se presentan en la Fig.4. Se puede observar que el contacto en el FeCrAl se produce mucho tiempo después que en el Zry. Se puede observar que el tamaño del gap se vuelve cero al menos 15.000 horas después y que la tensión circunferencial aumenta también después por lo q la pastilla es menos tiempo exigida. En la temperatura central también se observa el cambio de pendiente dando también indicio de esto. Por otro lado, la liberación de gases de fisión final es menor en el FeCrAl que en el Zry, así como también la presión interna y el espesor de óxido. Este último se reduce a prácticamente la mitad para el FeCrAl.

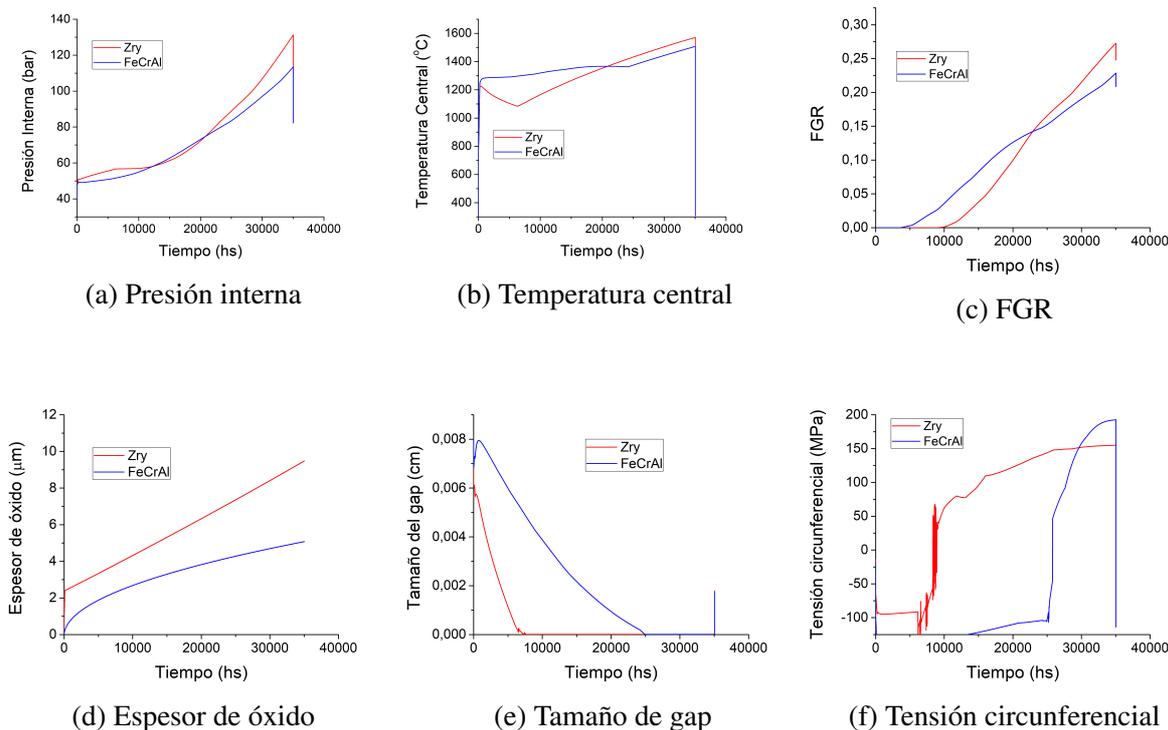


Figura 4: Comparación de resultados del *benchmark* entre vainas de Zry-4 y FeCrAl.

4.2. Benchmarks de experimentos PUZRY

En la Fig.5 se pueden observar los resultados obtenidos para la simulación de los experimentos PUZRY. Se pueden observar dos curvas de presión y tiempo de explosión para cada material. Se observa una superioridad del FeCrAl sobre el rango de 900 a 1100 °C dado que rompe a tiempos y presiones mayores.

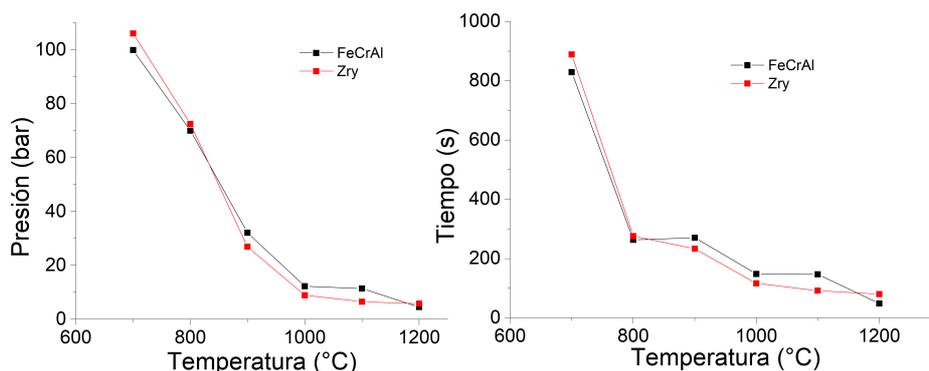


Figura 5: Presión y tiempo de explosión para vainas de FeCrAl y Zry de las simulaciones de los experimentos PUZRY

4.3. Experimento termohidráulico sin irradiación

Los resultados de la simulación del experimento mencionado se pueden encontrar en la Fig.6. Se puede observar como las diferentes temperaturas de la vaina caen dentro del rango de los re-

sultados experimentales. Sin embargo, la separación entre las curvas es menor a la del resultado experimental. Esto se debe a que DIONISIO simula sólo una barra y no el manojó de barras disminuyendo así la contribución térmica de las barras laterales. Por otro lado, se puede observar los resultados de la liberación de hidrógeno en dos gráficos a la derecha de la figura, por encima la masa acumulada y por debajo, la cantidad detectada en ese instante. Se puede observar cómo DIONISIO predice tanto la generación como la acumulación de hidrógeno sobrestimando la cantidad total dando un resultado más conservativo.

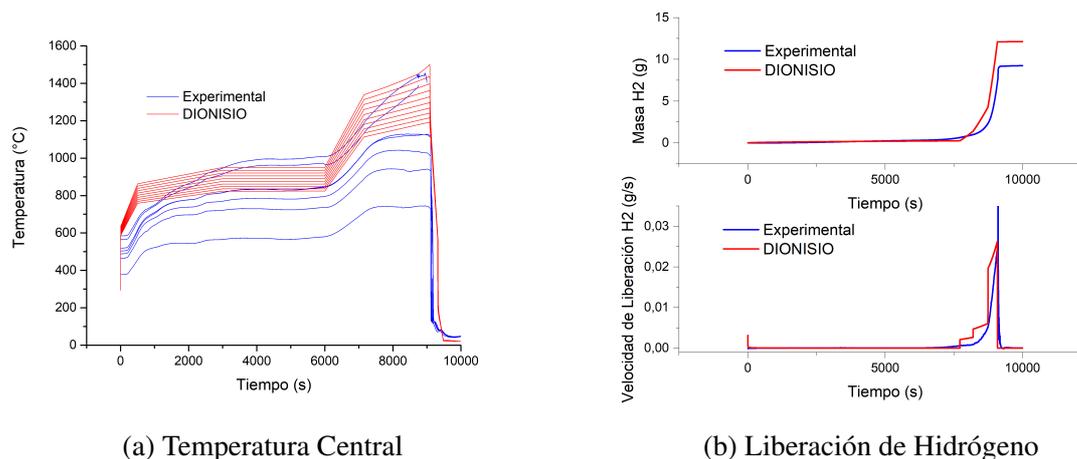


Figura 6: Comparación de los resultados del experimento termohidráulico sin irradiación con el cálculo de DIONISIO.

5. CONCLUSIONES

En este paper se describe la inclusión de distintos modelos termomecánicos, termo físicos y de oxidación en el código DIONISIO permitiendo simular el comportamiento de aleaciones de FeCrAl para la vaina.

Con los modelos ya incluidos dentro del código se realizó una comparación entre los resultados para vainas de Zry-4 y de FeCrAl. Se realizaron tanto comparaciones para condiciones normales de operación como para predecir el funcionamiento de la explosión en accidentes tipo LOCA utilizando los experimentos sin irradiación denominados PUZRY. Para el caso de condiciones normales de operación se pudo observar que el contacto entre la pastilla y la vaina se produjo 15.000 horas después para el caso del FeCrAl y se observó mejores condiciones entre ellas, menor liberación de gases de fisión, menor espesor de óxido, menor presión interna y menor temperatura central de la pastilla, una vez finalizada la historia de potencia de la simulación. Para el caso de los experimentos PUZRY simulados, se observó que el rango óptimo de explosión se encontró entre los 900 y los 1100 °C donde la vaina rompe después y a mayor presión.

Finalmente, se compararon los resultados de un experimento termohidráulico sin irradiación que simulaba un accidente severo con los resultados de DIONISIO. En este caso, el código predijo la temperatura exterior de las vainas y la liberación de hidrógeno producto de la oxidación de la misma con vapor sobrecalentado.

REFERENCIAS

- E. Goldberg M. E. Cazado M.E.L.P.y.A.S. New module for simulating experiments without irradiation included in the dionisio 3.0 code. *Nuclear Engineering and Design*, 374:111067, 2021.
- E. Goldberg M. E. Loza Peralta y.A.S. Dionisio 3.0: Comprehensive 3d nuclear fuel simulation through pcmi cohesive and plenum models. *Journal of Nuclear Materials*, 532:121–134, 2019.
- Field K.G., Snead M.A., Yamamoto Y., y Terrani K.A. *Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications*. ORNL/SPR–2018/905, 2018.
- IAEA. *Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels (ATF-TS)*, volumen I. <https://www.iaea.org/projects/crp/t12032>, 2018.
- IAEA. Analysis of options and experimental examination of fuel for water cooled reactors with increased accident tolerance. Informe Técnico IAEA-TECDOC-1921, International Atomic Energy Agency (IAEA), 2020.
- KANTHAL. *APMT Tube Datasheet*, 2021. <https://www.kanthal.com/en/products/material-datasheets/tube/kanthal-apmt/>.
- Kim C., Tang C., Maeng Y., Grosse M., y Steinbrueck M. Oxidation kinetics of nuclear-grade fecral alloys in steam in the temperature range 600-1500°C. *TopFuel 2021*, 2021.
- M. E. Loza Peralta M. E. Gonzalez E.V.E.A.B.y.A.S. Thorium cycle models into dionisio code: species, thermomechanical behaviour and fission gas release. *Journal of Nuclear Materials*, 557:153279, 2021.
- Niffenegger M. y Reichlin K. The proper use of thermal expansion coefficients in finite element calculations. *Nuclear Engineering and Design*, 243:356–359, 2012.
- Pasamehmetoglu K. *State-of-the-Art Report on Light Water Reactor Accident-Tolerant Fuels*, volumen I. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2018.
- Pastore G., Gamble K.A., y Hales J.D. Modeling benchmark for fecral cladding in the iaea crp actof: Fecral-c35m material models and benchmark cases specifications. Informe Técnico INL/EXT-17-43695-Rev000, Idaho National Lab. (INL), 2017.