

# PLACA/DPLACA: un código para la simulación del comportamiento de un combustible tipo PLACA monolítico/disperso.

Denis A., Soba A.

[denis@cnea.gov.ar](mailto:denis@cnea.gov.ar); [soba@cnea.gov.ar](mailto:soba@cnea.gov.ar)

Códigos y Modelos, Combustibles Nucleares, CAC, CNEA.

## Abstract

The PLACA code was originally built to simulate monolithic plate fuels contained in a metallic cladding, with a gap in between. The international program of high density fuels was recently oriented to the development of a plate-type fuel of a uranium rich alloy with a molybdenum content between 6 to 10 w%, without gap and with a Zircaloy cladding. To give account of these fuels, the DPLACA code was elaborated as a modification of the original code. The extension of the calculation tool to disperse fuels involves a detailed study of the properties and models (still in progress). Of special interest is the material formed by UMo particles dispersed in an Al matrix. This material has appeared as a candidate fuel for high flux research reactors. However, the interaction layer that grows around the particles has a deleterious effect on the material performance in operation conditions and may represent a limit for its applicability. A number of recent experiments carried out on this material provide abundant information that allows testing of the numerical models.

## Introducción

La primera generación de reactores de investigación del tipo conocido como MTR comienza a operar en 1952. Emplea combustibles placa constituidos por aleaciones de Uranio-Aluminio que consisten básicamente de intermetálicos de  $UAl_2$  y  $UAl_3$  dispersos en matriz de Aluminio. Estos combustibles requieren un alto enriquecimiento, 90%, en el isótopo  $U^{235}$ . En busca de combustibles que permitiesen una mayor cantidad de uranio en los años 60 comienzan a utilizarse óxidos de uranio dispersos en aluminio, el más común de ellos  $U_3O_8$ -Al, que aumenta de 30 a 50 % la densidad de uranio. A partir de 1978 en todo el mundo y a instancias el gobierno de USA, se propone la conversión de todos los combustibles en reactores de investigación en uso a combustible con Uranio de bajo enriquecimiento (<20% de  $U_{235}$ ), por el peligro de manipular material radiactivo para uso bélico, en el marco del programa denominado Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) [1. De los muchos combustibles utilizados en reactores de investigación, los candidatos para reemplazar los de alto enriquecimiento fueron los sistemas  $UAl_x$ -Al,  $U_3O_8$ -Al y  $UZrH_x$ , que para 1978 poseían densidades de uranio de 1.3, 1.7 y 0.5 g-U/cm<sup>3</sup> respectivamente. En principio se buscó llevar esas densidades a los valores más altos posibles dentro del programa de desarrollo de combustible LEU (Low Enrichment Uranium) de alta densidad. Fueron elevadas hasta 2.3 g-U/cm<sup>3</sup> para  $UAl_x$ -Al, 3.2 g-U/cm<sup>3</sup> para  $U_3O_8$ -Al y 3.7 g-U/cm<sup>3</sup> para  $UZrH_x$ . Posteriormente, los combustibles de siliciuros LEU, que utilizan partículas de  $U_3Si_2$  dispersas en Aluminio, permitieron alcanzar densidades de uranio de 4.8g/cm<sup>3</sup>.

Como resultado de este esfuerzo, cerca de 40 reactores fueron convertidos o construidos utilizando combustibles LEU. Sin embargo, esas densidades continúan siendo bajas para reactores de muy alto flujo.

De este modo da comienzo la búsqueda de un combustible nuevo, más denso, que contenga al menos 8-9 g U/cm<sup>3</sup>, empleando una aleación diferente. La **Tabla 1** muestra, a modo de ejemplo, algunas aleaciones posibles y sus respectivas densidades.

Tabla 1. Aleaciones con alto contenido de uranio

| Aleación (wt.%) | Densidad (g/cm <sup>3</sup> ) | Contenido de U (g/cm <sup>3</sup> ) |
|-----------------|-------------------------------|-------------------------------------|
| U-10Mo          | 17.0                          | 15.3                                |
| U-4Mo           | 18.1                          | 17.4                                |
| U-9Nb-3Zr       | 16.2                          | 14.3                                |
| U-4Zr-2Nb       | 17.3                          | 16.3                                |

En 1997 comenzaron los experimentos RERTR-1 & 2 en el Advanced Test Reactor (ATR) en Idaho, diseñados para explorar una serie de aleaciones de muy alta densidad [2]. Se construyeron placas en matriz de aluminio 6061 y diez de los doce combustibles ensayados fueron aleaciones de uranio: U-10Mo, U-8Mo, U-6Mo, U-4Mo, U-9Nb-3Zr, U-6Nb-4Zr, U-5Nb-3Zr, U-6Mo-1Pt, U-6Mo-0.6Ru y U-10Mo-0.05Sn. Los demás fueron compuestos intermetálicos de uranio: U<sub>2</sub>Mo y U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>. El U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> se utilizó como referencia, ya que su comportamiento bajo irradiación era muy conocido. El combustible se construyó con polvo atomizado en matriz de aluminio, colaminado con vainas de aluminio, constituyendo “mini placas” de aproximadamente 76 mm x 22 mm x 1.3mm, que fueron sometidas a baja potencia y baja temperatura. La cantidad de combustible de las mini placas fue relativamente baja (<30%).

Básicamente, los resultados de los experimentos muestran que el comportamiento bajo irradiación es óptimo para aleaciones de U con 6-10% en peso de Mo, con densidades de 15 g/cm<sup>3</sup> y con un enriquecimiento del 20%. Sobre la base de este primer grupo de resultados, los programas RERTR-3,-4 y -5 buscaron aumentar la cantidad de combustible en la matriz (50-60%), extender el quemado y las condiciones de operación y probar con diseños de placas con UMo monolítico [3,4,5,6,7,8].

Los resultados preliminares de los experimentos con combustible disperso arrojan resultados algo desalentadores pues se registra un excesivo crecimiento de una fase de intermetálicos generada entre el compuesto fisil y la matriz de aluminio, la cual produce un aumento significativo de la temperatura de operación de los combustibles, el hinchado no controlado y la consecuente falla de las placas. Al mismo tiempo, el crecimiento de esta fase intermetálica, al ser un proceso controlado por difusión, depende de la relación superficie-volumen de las partículas combustibles, por lo que los experimentos mencionados también analizan la dependencia de este crecimiento con la forma de las partículas combustibles, hallándose diferencias entre las mini placas que utilizaron UMo obtenido por el proceso de atomización (esféricas) de las obtenidas por otros métodos [9-10].

Existen en la actualidad varios programas de desarrollo de combustible UMo abocados al análisis de esta aleación y posibles soluciones al problema. Son llevados a cabo en USA, Argentina, Francia, Canadá y Rusia y apuntan a resolver el problema de los productos de reacción Al-UMo y el hinchado inestable que produce. Una propuesta es el desarrollo de combustibles monolíticos con vaina de Zircaloy.

### Modelado Numérico.

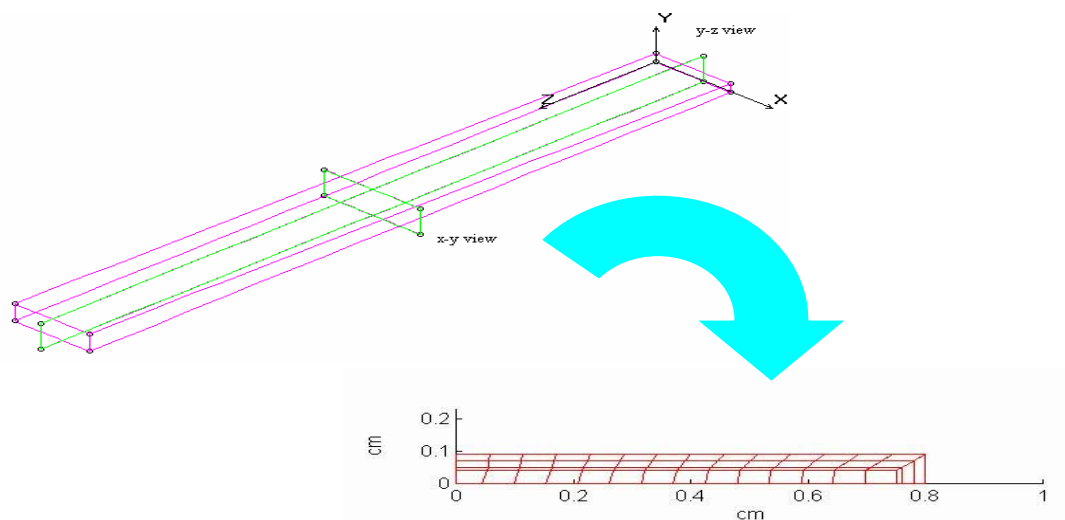
PLACA es un programa originalmente construido para estudiar la factibilidad de utilizar combustibles monolíticos de geometría plana, con vaina metálica y con la presencia de un *gap* [11]. Con el reciente interés del programa de combustibles de alta densidad de desarrollar un combustible tipo placa de UMo envainado en Zircaloy, sin *gap*, PLACA se vio reorientado hacia el análisis termomecánico de dichos combustibles. La extensión del código a combustible disperso involucró un estudio detallado, y aún en desarrollo, de propiedades y modelos de los aspectos particulares de este tipo de combustibles, en particular los estudios de UMo disperso en aluminio, con las correspondientes capas de intermetálicos que se generan.

De este modo, nace DPLACA como una extensión natural del código original dedicado a combustibles monolíticos.

El código, en sus dos versiones, es quasi tridimensional pues trabaja sobre dos planos que son cortes en  $x$ - $y$  e  $y$ - $z$  del elemento y modela el comportamiento termomecánico y termoquímico de combustibles tipo placa, dispersos o monolíticos. La sección  $x$ - $y$  se ubica en la zona de mayor exigencia del elemento combustible, determinado a partir de la evaluación en primera instancia de la distribución de temperaturas a lo largo de la placa (dirección  $z$ ). De dicha distribución se obtiene el punto de mayor temperatura y flujo calórico (*Figura 1*).

El programa recibe, como parámetro de entrada, el tipo de combustible (básicamente U-(x%w)Mo pero contiene modelos para  $U_3Si_2$  y  $UAl_x$ ), las dimensiones físicas de la placa, la velocidad de circulación del agua de refrigeración, su caudal másico y la historia de flujo neutrónico o de potencia lineal a la que es sometido el elemento. Esa historia se divide en rampas de potencia y en períodos estacionarios. Las rampas se subdividen a su vez en un número de escalones a elección del programador. Si el combustible es disperso, se deben determinar parámetros relacionados con la forma de las partículas combustibles (esféricas o no).

El primer cálculo sobre el dominio es la distribución de temperatura a partir de la potencia lineal o del flujo de neutrones aplicado, así como del tipo de combustible utilizado. Una vez determinada la distribución térmica y la correspondiente deformación mecánica del elemento debida a la exigencia generada por la rampa de potencia, se procede a evaluar las variables del sistema, que dependen del tiempo bajo irradiación y/o de la temperatura, dentro de la duración del período estacionario



*Figura 1 : Dos visiones de PLACA/DPLACA: x-y e y-z.*

El código permite determinar tiempos de recálculo, dentro de los períodos estacionarios, para actualizar los parámetros de los que depende la conductividad térmica del material fisil así como la fracción en volumen de combustible, el tamaño de la capa de óxido, el hinchado acumulado o, en el caso de combustibles dispersos, la fracción en peso de los compuestos intermetálicos que se generan bajo irradiación, para después recalcular la temperatura y las deformaciones mecánicas en las nuevas condiciones. Utiliza el método de elementos finitos para analizar la distribución de temperaturas y las deformaciones mecánicas. Los elementos son cuadrangulares lineales y posee un generador de mallas embebido que sólo necesita las dimensiones del elemento como datos para generar enteramente el mallado del dominio. Dado que la distribución de temperaturas resulta determinante de los parámetros físicos del problema, los modelos involucrados en su evaluación son cruciales. Uno de los

más importantes es el modelo utilizado para la conductividad térmica, en especial en el caso de combustibles dispersos, donde el *meat* es un material compuesto. Se ha generado un modelo para dicho parámetro que se comparó con éxito con modelos de conductividades utilizados en códigos similares de cálculo y con datos experimentales.

Cuando el material de la vaina es aluminio, es necesario considerar el crecimiento de una capa de óxido sobre la superficie en contacto con el agua. La misma influye en la distribución térmica dentro del elemento.

El problema termo-elasto-plástico se resuelve en deformación plana mediante un algoritmo del tipo predictor-corrector. El módulo de Young, el de Poisson y la tensión de fluencia para cada material se obtienen de la literatura con modelos que contemplan, en el caso del combustible disperso, la fracción de volumen de cada material.

El hinchado o *swelling* afecta al *meat* en el compuesto de uranio y en el intermetálico. Ambas fórmulas son empíricas y fueron elaboradas a partir de datos de exámenes post-irradiación. Para los combustibles dispersos se adoptó para el crecimiento del mencionado intermetálico la correlación desarrollada por J. Rest [12 para combustibles tipo siliciuros, con ciertas modificaciones que dependen del combustible del que se trate (agregado de la dependencia con el contenido en peso de Molibdeno y una energía de activación apropiada para combustibles UMO). Después de hallar el ancho de esa capa de interacción, se evalúa qué porción en volumen de intermetálico se forma dentro de la partícula, a expensas combustible, y qué porción crece hacia el aluminio. Otro factor importante e influyente en este tipo de combustibles es la porosidad inicial. Su disminución a lo largo del quemado, conocida como densificación, se simula mediante una ley exponencial que depende del número de fisiones por unidad de volumen que se producen en el *meat*.

## **Modelos incluidos en PLACA**

Como se observa en las variables medidas *in situ* y en las caracterizaciones post irradiación, el problema de la interacción UMO-Al juega un rol importante en todo el comportamiento del combustible, básicamente por su influencia negativa tanto en el aumento del espesor de la placa, que pone en riesgo el funcionamiento del propio reactor, como en la elevación de la temperatura de trabajo del elemento que requiere de mayor velocidad del refrigerante para la evacuación del calor, así como la aceleración de los fenómenos de hinchado y crecimiento no controlado de la ya mencionada capa de reacción.

La resolución involucra, además, un conjunto de modelos que hacen al tratamiento de problemas termoelastoplásticos en materiales compuestos, modelos de análisis de temperatura con condiciones de contorno hidráulicas con agua a velocidad y análisis de crecimiento de capa de óxido en la superficie de la vaina en contacto con el agua. A esto se suman los modelos que describen el cambio de composición en el *meat*, así como los modelos de hinchado y porosidad.

### **I) Materiales involucrados. Material compuesto.**

Cada material dentro de PLACA es tratado en forma independiente y caracterizado con sus constantes correspondientes. La vaina puede ser de Aluminio o de Zircaloy y el usuario debe determinar ese dato en la entrada del programa. Además de poseer constantes materiales distintas, la presencia de uno u otro influye en la generación de capas de óxido o de productos de reacción, como se verá más adelante. El combustible puede ser de dos tipos: monolítico o disperso. El caso monolítico es sencillo pues se considera un material único, de origen metálico o cerámico según el caso. En cambio, en un material disperso deben utilizarse reglas de mezcla características de materiales compuestos para las diferentes constates materiales.

En primer lugar, la densidad de la aleación es fundamental para conocer la cantidad de uranio y de material fisil presente en el combustible. Este dato es el requerido por los análisis neutrónicos para calcular la criticidad de un reactor con ese combustible en el núcleo. Un combustible determinado se provee con un porcentaje en volumen de material fisil y la densidad de uranio del compuesto fisil. A partir de estos datos es posible evaluar el contenido de uranio en todo el material disperso.

Tabla 2: Constantes materiales de compuestos.

|                                  | Fórmula Superior                    | Fórmula Inferior   |
|----------------------------------|-------------------------------------|--|
| Módulo de Young E                | $E_M V_M + E_{MF} V_{MF}$           | $(E_M E_{MF}) / (E_M V_M + E_{MF} V_{MF})$                                   |
| Módulo de Poisson $\nu$          | $\nu_M V_M + \nu_{MF} V_{MF}$       | ----   |
| Cte. Dilatación Térmica $\alpha$ | $\alpha_M V_M + \alpha_{MF} V_{MF}$ | $(E_M \alpha_M V_M + E_{MF} \alpha_{MF} V_{MF}) / (E_M V_M + E_{MF} V_{MF})$ |
| Tensión de Fluencia $\sigma_Y$   | $\sigma_Y V_M + \sigma_Y V_{MF}$    | -----  |

La **Tabla 2** presenta las constantes materiales involucradas y las leyes de mezcla utilizadas para tratar el compuesto; el subíndice M representa a la mezcla mientras que MF al material fisil.  $V_x$  es la fracción en volumen de la fase X. En el caso U-(x%w)Mo las fórmulas superiores dan las respuestas más adecuadas para los análisis desarrollados en este trabajo. [13,14].

La densidad de las fases que se forman como productos de reacción es de gran importancia para el análisis de los procesos relacionados con el cálculo de la temperatura. Como estas nuevas fases poseen menor densidad, aumentan el volumen del núcleo disperso y contribuyen al hinchado bajo irradiación. No se sabe mucho sobre la estequiometría ni la estructura o densidad de estas fases [15,16]. Suponiendo que el molibdeno sustituye en la fase  $UAl_x$  al uranio, se ha desarrollado una fórmula rústica de correlación para la densidad de los aluminuros en función de la estequiometría de los mismos. [17]

$$\rho(U-Mo)Al_x = 9.38 - 0.98x$$

dada en  $g\ cm^{-3}$  y válida para el rango  $x=(2, 4.5)$ .

## II) Condición de contorno hidráulica. Capa de óxido.

Cada placa de combustible forma parte de un dispositivo que contiene un número de placas determinado por el diseño y el tipo de combustible utilizado. Las mismas están separadas por un canal por donde circula el agua que hace las veces de refrigerante del reactor. El agua ingresa al núcleo con un caudal y una velocidad que son propias del diseño del reactor y determina la velocidad de extracción de calor desde los elementos combustibles. Los límites térmicos de este intercambio están dados por la necesidad de no generar puntos de ebullición en la superficie de las placas ya que las burbujas dificultan la extracción de calor y generan un aumento de la temperatura. Los límites mecánicos son impuestos por la necesidad de evitar que una diferencia de presión de lado a lado de la placa provoquen vibración de las mismas y aumenten la posibilidad de un pandeo que origine el cierre de un canal y el consiguiente contacto entre placas, lo que también generaría un punto de muy mala extracción de calor. El agua que ingresa en el primario lo hace a una temperatura, para reactores de investigación, en el rango de 35 y 50°C. La presión depende de la profundidad del combustible en la piletta de agua y toma valores entre 1 a 2 atmósferas.

PLACA requiere, como parámetros de entrada, el caudal, la velocidad, la temperatura y la presión de agua al ingreso. Por otro lado el flujo neutrónico dentro del reactor no es uniforme a lo largo de la placa combustible ni en todo el núcleo. El programa requiere el flujo neutrónico nominal o máximo en la posición en la que se desea calcular el rendimiento del combustible. El código supone que en la dirección  $z$  ese flujo sigue una ley cosenoidal. El

programa calcula, en la visión y-z, la distribución térmica en base a la potencia que ese flujo genera, teniendo en cuenta la condición de contorno de mojado que el agua produce sobre la placa.

Otro factor importante en la distribución de temperaturas lo constituye el crecimiento de la capa de óxido que se produce sobre la superficie de la placa en contacto con el agua. Esa capa aumenta en función de la temperatura de trabajo, la composición química del agua y el material de la vaina. Para el caso del aluminio-agua, PLACA utiliza la formulación de Griess para establecer la evolución de la misma.

$$d_{ox} = 11250 \cdot t^{0.778} \cdot \exp(-4600/T)$$

donde  $d_{ox}(\mu m)$  es el ancho de la capa de óxido,  $t(h)$  el tiempo y  $T(K)$ , la temperatura sobre la superficie.

La capa de óxido, además de tener una conductividad térmica menor por lo que aumenta en general la temperatura, reduce la distancia entre placas lo cual disminuye el caudal de agua del refrigerante limitando la extracción de calor.

Cuando el material de la vaina es Zircaloy, la capa de óxido no se considera ya que a la temperatura tan baja de trabajo no muestra un crecimiento apreciable.

### III) Modelado de la conductividad térmica.

Para establecer la distribución de temperatura dentro del dominio se consideran tres suposiciones básicas: la primera es que se establece un equilibrio en el intercambio de calor que permite hablar de distribuciones de temperatura no uniformes pero estacionarias en toda la placa. En segundo lugar, se considera que el flujo de neutrones en la dirección z sigue una función cosenoidal. En tercer lugar, se consideran a las rampas de potencia como una sucesión finita de escalones estacionarios hasta alcanzar el mínimo o el máximo, según sea el caso.

Con estas hipótesis y dado un flujo neutrónico, una composición de material fisil y un enriquecimiento es posible hallar la potencia por unidad de volumen que se generara dentro del combustible placa. El calor producido por unidad de tiempo en un volumen elemental del disperso a una distancia z en la dirección longitudinal estará dada por la ley

$$dq_g(z) = q'_M \cdot \cos\left(\frac{\pi \cdot z}{2l_0}\right) dz$$

en donde  $q'_M$  es la potencia lineal máxima y  $2l_0$  representa la longitud extrapolada de la placa. En estado estacionario, todo el calor generado debe ser removido a través de la superficie en contacto con el refrigerante. Resolviendo la ecuación de balance de calor se obtiene la distribución de temperatura en el canal, siempre en función de la coordenada z. Conociendo el flujo de masa en el canal, es posible establecer a través de la ley de Newton, la temperatura en la superficie de la placa, la cual sirve de condición de contorno al problema de distribución de temperatura para el sistema discretizado en elementos finitos.

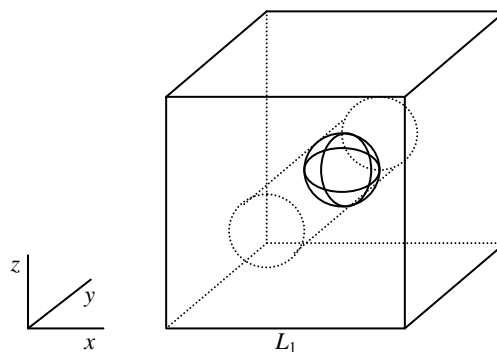


Figura 2: Esquema del modelo propuesto

De este modo, PLACA provee, en función de la distancia longitudinal, la temperatura del refrigerante en el centro del canal, la temperatura sobre la superficie exterior de la vaina, la temperatura sobre la interfase óxido-vaina en el caso del aluminio, y la temperatura en todo el dominio discretizado.

El cálculo térmico es altamente dependiente de los coeficientes de conductividad utilizados. Para el caso de combustible monolítico, ellos dependen, en general, sólo de la temperatura y de la porosidad, mientras que en el caso de un combustible disperso, dependen de la mezcla y, fundamentalmente, de los productos de reacción generados en la interfase combustible-matriz.

Para calcular la conductividad térmica efectiva de un material formado por partículas dispersas en una matriz de otro constituyente, suponemos, en primer lugar, que las partículas dispersas son esféricas, de tamaño uniforme y que ocupan una fracción  $f$  del volumen. Si suponemos, además, que cada partícula está completamente rodeada por la matriz, podemos asociar a cada una una celda de volumen  $V_1=1/N_1$  (**Figura 2**). Suponemos que la celda que contiene una partícula es un cubo de arista  $L_1$ , o sea,  $L_1=(N_1)^{-1/3}$ . La yuxtaposición de celdas como ésta tantas veces como partículas estén presentes, genera todo el material disperso.

Consideramos que el calor fluye únicamente en la dirección  $y$ . Para calcular la conductividad efectiva del material compuesto, construimos un tubo cilíndrico de generatriz paralela al eje  $y$  y de igual radio que la partícula (**Figura 2**). A través de la cara  $xz$ , el calor atraviesa dos materiales en paralelo: el cilindro que contiene a la partícula y el material de la matriz. Si designamos con  $k_c$  y  $k_m$  a las conductividades térmicas respectivas, y con  $k_d$  a la del material compuesto, tenemos

$$k_d = (\pi R_1^2 / L_1^2) k_c + [1 - (\pi R_1^2 / L_1^2)] k_m$$

donde se ha tenido en cuenta la fracción de área ocupada por cada componente.

Pero el calor que se transmite a través del cilindro encuentra a dos materiales distintos en serie: uno es el de la matriz y el otro, el de la partícula. Luego, la conductividad equivalente del cilindro está dada por

$$k_c^{-1} = 2R_1 / L_1 \cdot k_p^{-1} + (1 - 2R_1 / L_1) \cdot k_m^{-1}$$

donde  $k_p$  representa a la conductividad térmica de las partículas dispersas y se ha tenido en cuenta la fracción de longitud del cilindro ocupada por cada componente. Reuniendo ambas expresiones, resulta la siguiente relación entre la conductividad efectiva de la dispersión y la de la matriz:

$$\frac{k_d}{k_m} = 1 - \pi \left( \frac{R_1}{L_1} \right)^2 \cdot \left[ 1 - \frac{k_p / k_m}{2R_1 / L_1 + (1 - 2R_1 / L_1) k_p / k_m} \right]$$

Dado que la fracción en volumen ocupada por las partículas, es  $f = (4/3)\pi R_1^3 / L_1^3$ , la conductividad efectiva resulta

$$\frac{k_d}{k_m} = 1 - \frac{3f/2(k_m/k_p - 1)}{1 + 2(3f/4\pi)^{1/3}(k_m/k_p - 1)} \quad [1]$$

Si el material disperso, además, contiene poros, la conductividad efectiva del sistema podrá calcularse por aplicación sucesiva de la expresión anterior. En efecto, introduciendo la porosidad,  $P$  y considerando que cada poro está inmerso en un medio cuya conductividad térmica es  $k_d$ , esto es, la conductividad equivalente de la dispersión sólida, obtenemos la conductividad equivalente,  $k_e$ , del material disperso y poroso en la forma

$$\frac{k_e}{k_d} = 1 - \frac{(3P/2)(k_d - k_v)}{k_v + 2(3P/4\pi)^{1/3}(k_d - k_v)}$$

donde  $k_v$  es la conductividad térmica del gas que ocupa el poro. Si éste se encuentra vacío o bien si está lleno por un gas de conductividad despreciable frente a la de la dispersión, la expresión anterior toma la forma:

$$\frac{k_e}{k_d} = 1 - \pi \left( \frac{3P}{4\pi} \right)^{2/3}$$

de donde

$$\frac{k_e}{k_m} = \left[ 1 - \pi \left( \frac{3P}{4\pi} \right)^{2/3} \right] \cdot \left[ 1 - \frac{(3f/2)(k_m/k_p - 1)}{1 + 2(3f/4\pi)^{1/3}(k_m/k_p - 1)} \right] \quad [2]$$

Esta expresión es aplicable para determinar la conductividad equivalente de un material disperso que contiene poros. Tal es el caso de la elaboración de placas combustibles para reactores nucleares de investigación, donde el proceso de laminación deja una porosidad remanente, que es significativamente mayor cuando se incrementa la carga de partículas dispersas, ya sea porque el material de la matriz no alcanza a fluir completamente alrededor de cada partícula o bien porque durante la laminación se produce con frecuencia la rotura de partículas dispersas. Se forman así poros adyacentes a las partículas que no alcanzan a ser llenados por el material de la matriz y quedan, por lo tanto, inicialmente vacíos.

En cambio, durante el quemado del combustible nuclear, se producen burbujas que se llenan con los productos de fisión gaseosos y aparecen distribuidas en el interior de las partículas del compuesto fisil. Su presencia también altera a la conductividad térmica del conjunto pero de un modo diferente a los poros descritos más arriba ya que alteran al parámetro  $k_p$  que interviene en la ecuación [1]. Para incluir la influencia de las burbujas, se realiza un análisis similar al que condujo a la ecuación [1] pero considerando que las burbujas están dispersas en el material de la partícula. Nuevamente se supone que cada burbuja está enteramente rodeada por material sólido, en este caso el de la partícula. Dado que la concentración de burbujas, y posiblemente también su tamaño, crecen durante el quemado del combustible, esta suposición limita la aplicación de este modelo.

Si indicamos con  $k_b$  a la conductividad térmica del gas que ocupa las burbujas, con  $k_p^e$  a la conductividad equivalente de las partículas combustibles, y con  $b$  a la fracción de volumen de las partículas ocupada por burbujas, resulta

$$\frac{k_p^e}{k_p} = 1 - \frac{(3b/2)(k_p/k_b - 1)}{1 + 2(3b/4\pi)^{1/3}(k_p/k_b - 1)} \quad [3]$$

La conductividad equivalente del sistema completo se obtiene a partir de la ecuación [2] levemente modificada, reemplazando  $k_p$  por  $k_p^e$  obtenido de [3].

De acuerdo a estos resultados es posible entonces expresar la conductividad térmica efectiva de un material compuesto poroso como una función de la conductividad del compuesto de uranio, la del material de la matriz, el porcentaje inicial de compuesto, de matriz y de potros y de la temperatura. El modelo así construido se compara con datos experimentales para el caso en el que el compuesto de uranio es  $U_3Si_2$  (**Figura 3**). Se observa que el acuerdo es aceptable, particularmente en el rango de mayor interés tecnológico [15,18].

Para el caso en el que el combustible es UMo, se compararon datos experimentales para porcentajes en peso de molibdeno entre el 10 y el 6%. El rango de conductividades predicho se compara con los obtenidos numéricamente para dos temperaturas: 300 y 573 K. Los resultados se incluyen en la **Figura 4**.



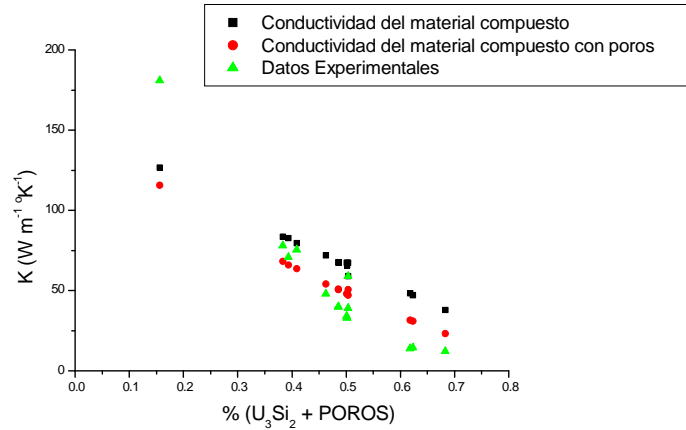


Figura 3: Comparación con datos experimentales para el caso en el que el combustible es  $U_3Si_2$ .

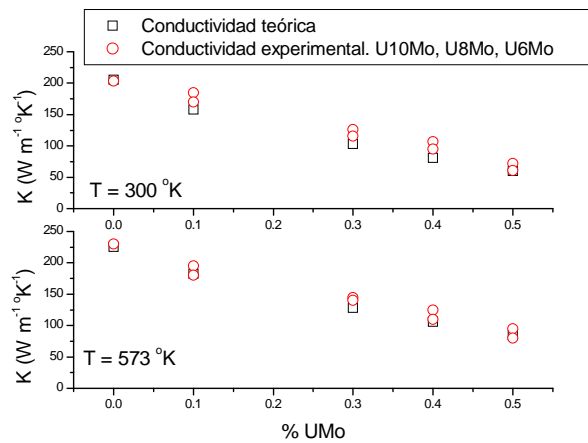


Figura 4: Datos experimentales comparados con la curva analítica para UMo al [10-6] %..

Por otro lado, en el caso en que la conductividad térmica se ve afectada por el crecimiento de la fase de intermetálico producto de la reacción UMo-Al, la conductividad efectiva se modifica del siguiente modo

$$k_p = \left( \frac{1 - \frac{r(t)}{r_{Umo}}}{k_p} + \frac{\frac{r(t)}{r_{Umo}}}{k_{Int}} \right)^{-1}$$

donde  $k_p$  es la conductividad del combustible (con o sin burbujas),  $k_{int}$  es la conductividad del producto de la reacción y  $r_{Umo}$  es el radio de la partícula de combustible y  $r(t)$  representa al espesor de la capa de interacción. La capa de reacción recubre a la partícula de combustible y lo aísla de la matriz más conductora, disminuyendo la conductividad y aumentando la temperatura del sistema.

La correlación para determinar el espesor de la capa de interacción es empírica y depende de la cantidad en peso de Mo que contiene la aleación, de la tasa de fisiones, del tiempo y de la energía de activación del proceso. Estos parámetros se determinan a partir de ajustes de los datos de mediciones de esos espesores a partir de los exámenes post irradiación de combustibles placa RERTR-3 realizados por Meyer et al. [13,19].

$$r(t) = \sqrt{2.244310^{-19} (1.625 - 6.25w_{Mo}) f^{0.75} t \exp\left(\frac{-10000}{1.987T}\right)}$$

donde el ancho de la capa de interacción y está dada en cm,  $w_{Mo}$  es la fracción en peso de Mo,  $f$  es la tasas de fisión de las partículas de combustible (fisiones/(cm<sup>3</sup> seg)),  $t$  es el tiempo en segundos.

Para la visión  $x$ - $y$ , se toma en general el punto de temperatura más alto para analizar el comportamiento en máxima exigencia en la dirección transversal. Tanto los modelos de conductividad como las no linealidades son exactamente iguales en ambas visiones.

IV) Deformación elastoplástica [20]. Dilatación térmica.

Deformación elástica: En un sistema en coordenadas cartesianas, la distribución de tensiones  $\sigma_{ij}$  sobre un elemento de volumen, con la consideración de deformación plana, toma la forma

$$\{\sigma\}^t = \{\sigma_{xx} \sigma_{yy} \sigma_{zz} \sigma_{xy}\}$$

mientras que el término de deformaciones es

$$\{\varepsilon\}^t = \{\varepsilon_{xx} \varepsilon_{yy} \varepsilon_{xy}\}$$

La tensión se relaciona con la deformación mediante la ley de Hooke, cuya forma matricial es

$$\{\sigma\} = [D]\{\varepsilon\}$$

donde  $D$  es la matriz de cada material y depende de las constantes elásticas

Dilatación térmica: Las variaciones de temperatura al cambiar la potencia lineal generan una deformación por dilatación (o contracción) térmica del material. Ese cambio instantáneo se expresa matemáticamente mediante un vector deformación térmica

$$\{\varepsilon^{Th}\}_h^t = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx}^{Th} & \varepsilon_{yy}^{Th} & \varepsilon_{xy}^{Th} \end{bmatrix}_h = \alpha_h \Delta T [1 \quad 1 \quad 0]$$

donde  $\alpha_h$  es el coeficiente de dilatación térmica del material  $h =$  núcleo, vaina; y  $\Delta T$  es la variación de temperatura en grados Kelvin

Deformación plástica: A partir de la teoría de plasticidad de Hill y de las reglas de flujo de Levy Prandtl-von Mises se tiene para la deformación plástica

$$\{\varepsilon^P\}_h^t = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx}^P & \varepsilon_{yy}^P & \varepsilon_{xy}^P \end{bmatrix}_h$$

donde cada componente toma la forma

$$\varepsilon_{ii}^P = \frac{\varepsilon_{eq}}{\sigma_{eq}} [(\sigma_i - \sigma_j) + (\sigma_i - \sigma_k)] \quad ; \quad \varepsilon_{ij}^P = \frac{3\sigma_{ij}}{\sigma_{eq}}$$

con  $i=x,y$ , y donde  $\sigma_{eq}$  y  $\varepsilon_{eq}$  son la tensión y la deformación equivalentes

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{1}{2} \left( (\sigma_i - \sigma_j)^2 + (\sigma_j - \sigma_k)^2 + (\sigma_k - \sigma_i)^2 \right)}$$

$$\varepsilon_{eq} = \sqrt{\frac{2}{9} \left( (\varepsilon_i - \varepsilon_j)^2 + (\varepsilon_j - \varepsilon_k)^2 + (\varepsilon_k - \varepsilon_i)^2 \right)}$$

Ambas expresiones están relacionadas por una curva  $\sigma$ - $\varepsilon$ , dada por el ensayo de tracción uniaxial de cada material. La forma funcional teórica de dicha curva utilizada en PLACA es

$$\varepsilon_{eq} = A \sigma_{eq}^n$$

donde  $A$  y  $n$  son constantes que dependen de cada material y, eventualmente, de la

temperatura. La región plástica comienza a manifestarse después que la tensión supera la tensión de fluencia,  $\sigma_Y$ .

#### V) Capa de interacción. Difusión.

Después de hallar el ancho de esa capa de interacción, se evalúa qué porción en volumen de intermetálico se forma dentro en desmedro del combustible y qué porción crece hacia el aluminio [13,21,22].

El programa PLACA calcula inicialmente el número de partículas (las supone esféricas) de combustible disperso en la matriz de aluminio y, con la fracción en volumen que ocupan como dato, es posible evaluar la fracción en volumen de intermetálico que se genera, cuánto disminuye la fracción de aluminio y cuánto la de UMo. Para este cálculo es crucial el radio inicial de las partículas de UMo.

Si las partículas no son esféricas calcular los volúmenes de los productos de reacción no es tan sencillo. Se requiere utilizar factores de forma que dependen de la relación área volumen para las partículas, cuya forma debe ser ingresada como dato en PLACA.

#### VI) Hinchado gaseoso y sólido. Porosidad.

Hinchado: El hinchado o *swelling* afecta al *meat* en el compuesto de uranio y en el intermetálico. Ambas fórmulas son empíricas, obtenidas de exámenes post irradiación de placas de UMo de los test de irradiación RERTR-3, -4 y -5. Se observa que después de la recristalización se incrementa la velocidad del hinchado. El punto en que comienza la recristalización depende del porcentaje en peso de molibdeno que contenga el combustible. Antes de la recristalización el hinchado es aproximadamente 0.3% por % de quemado y asciende al doble después del comienzo de la recristalización.

La fórmula da cuenta del incremento observado en las muestras y que se manifiesta a partir de un número de fisiones determinado (en fisiones  $\text{cm}^{-3}$ )

$$swell = \begin{cases} Pl(x)(1.25 - 2.5w_{Mo})f & \text{para } f \leq PPRR \\ (1.25 - 2.5w_{Mo})(Pl(x) PPRR + Pl2(x)(f - PPRR)) & \text{para } f > PPRR \end{cases}$$

donde los valores de  $Pl(x)$ ,  $Pl2(x)$  y PPRR dependen de la proporción en peso de molibdeno que contenga el combustible y se adjuntan en la **Tabla 3**.

Tabla 3: parámetros utilizados en la fórmula empírica de Swelling.

| Aleación | PPRR     | $Pl(x)$  | $Pl2(x)$  |
|----------|----------|----------|-----------|
| U-6Mo    | 1.310-21 | 4.810-23 | 11.210-23 |
| U-7Mo    | 1.810-21 | 3.110-23 | 23.510-23 |
| U-10Mo   | 2.010-21 | 2.910-23 | 26.310-23 |

Se considera que el 25 % de este hinchado es debido a los productos gaseosos, acumulados en burbujas y contribuye a la degradación de la conductividad térmica calculada anteriormente.

Otra ley utilizada en la literatura corresponde al modelo

$$swell = \begin{cases} 5.833610^{-23}(1.25 - 2.5Wmo)f \\ (1.25 - 2.5Wmo)(0.1167 + 1.166710^{-22}(f - 210^{21})) \end{cases}$$

con  $f$  en fisiones/ $\text{cm}^3$ .

En tanto para los productos de reacción (aluminuros) el hinchado se calcula como:

$$Swell_{Inter} = 4 \times 10^{-23} \dot{f} t$$

donde la tasa de fisiones  $\dot{f}$  se expresa en fisiones/(m<sup>3</sup>seg)

Porosidad: La porosidad  $P_i$  de fabricación del combustible disminuye a medida que se produce el quemado. La densificación tiene lugar siguiendo una ley exponencial que depende de la tasa de fisiones en el *meat*

$$Dens = P_i \exp(-8.5 \times 10^{-28} \dot{f} t)$$

### Validación

La Comisión de Energía Atómica de Canadá (AECL) realizó una serie de experimentos en el reactor de investigación NRU a partir del año 2003 sobre mini barras combustible UMo con dos proporciones en peso de molibdeno, 7 y 10%. El experimento consistía en cuatro mini elementos de cada porcentaje en peso con vainas de aluminio, todos con una densidad de 4.5 g cm<sup>-3</sup> de uranio, que se irradiaron a una potencia lineal nominal de 100KW/cm hasta alcanzar un quemado de 20% de átomos de U<sup>235</sup>.

En ese punto se publicaron los resultados que tomamos en este trabajo para validar DPLACA. Los resultados medidos en el Chalk River Laboratory se comparan en la **Tabla 4** con las predicciones numéricas. Al tratarse de mini barras cilíndricas, los resultados experimentales son obtenidos en tres regiones, central, media y periférica, por lo que fueron promediados para compararlos con los datos por DPLACA, en base al promedio de temperatura radial. Cabe destacar que el hinchado medido se explica por el crecimiento e la capa de interacción, fuertemente dependiente de la temperatura, como se observa por la dependencia con la posición de la partícula de combustible con respecto al radio de la mini barra.

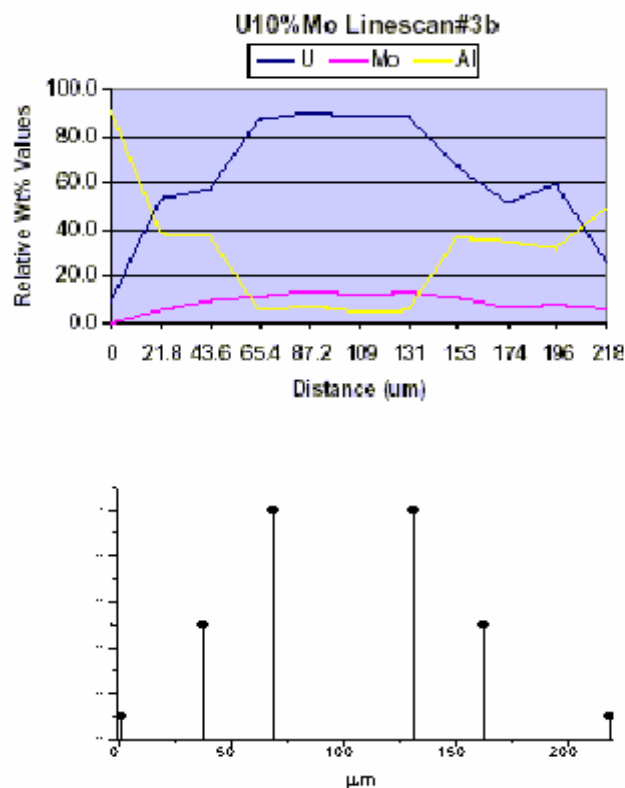


Figura 5: Comparación de los porcentajes de componente tomados por SEI con los predichos numéricamente.

Tabla 4: datos experimentales comparados con los calculados en PLACA

|            | Temp. promedio | Hinchado | Interm. Prom. |
|------------|----------------|----------|---------------|
| U-7Mo Exp  | 250            | ~6%      | 44.33         |
| U-7Mo Num  | 247            | ~4.3%    | ~49           |
| U-10Mo Exp | 250            | ~5.5%    | 34.667        |
| U-10Mo Num | 240            | ~4.0%    | ~37.0         |

Los análisis por SEI de porciones del material irradiado muestran el proceso de interdifusión de UMo y Al y la distribución en peso de los elementos involucrados. Dichos datos se compara con los resultados predichos por DPLACA para el diámetro final alcanzado por la partícula de UMo, el radio de la zona de interacción interior a la partícula de UMo y la zona en que dicha capa se extendió hacia la matriz de aluminio. Entre ambos conjuntos se observa una coincidencia cualitativa (*Figura 5*).

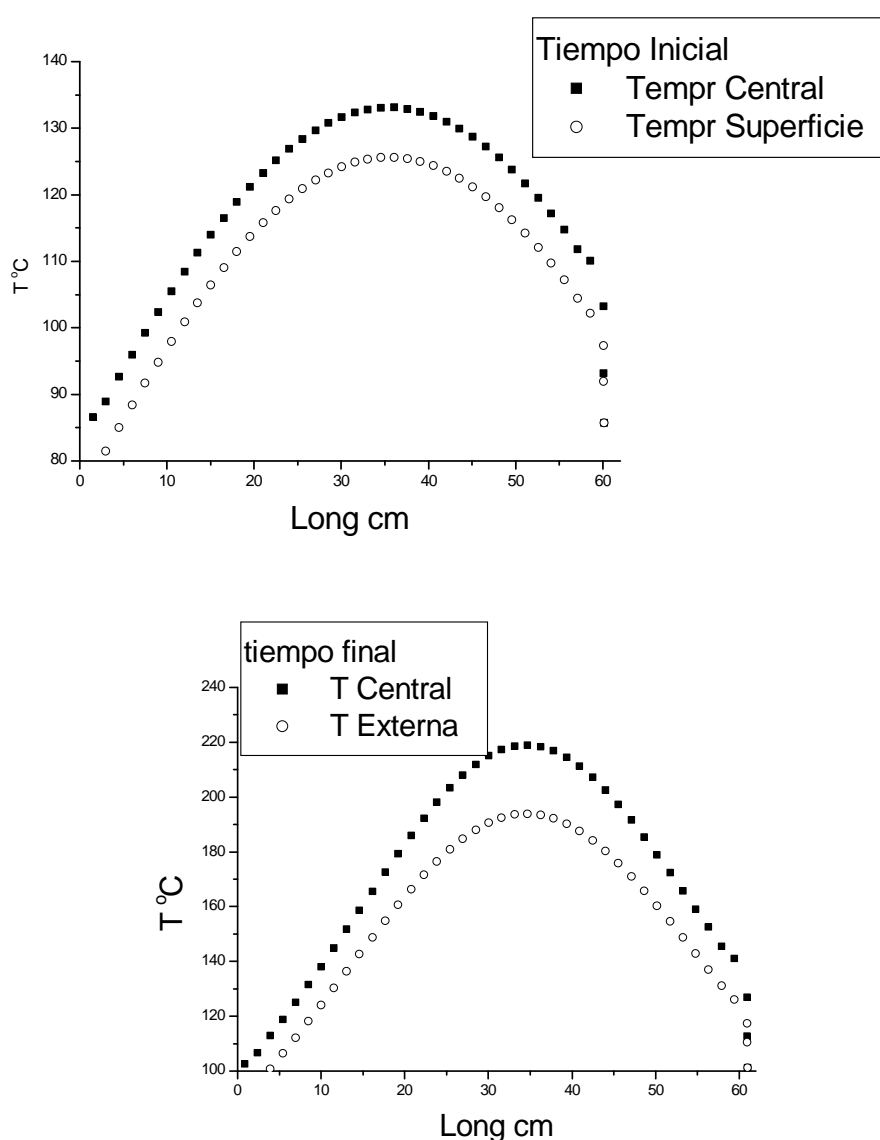


Figura 6: Temperatura central y exterior a la placa a según la dirección longitudinal. Predicciones en dos tiempos de irradiación.

El experimento FUTURE fue utilizado para validar el código MAIA [23] y nosotros buscamos comparar las predicciones de ambos códigos. El experimento analiza placas de U-7Mo de dimensión completa: 49.8 mm x 0.53 mm, con una densidad de uranio de 8.5g/cm<sup>3</sup>, con una porosidad de fabricación de 1.1%. Las placas fueron irradiadas a plena potencia durante 40 días a una potencia lineal de aproximadamente 1.2x10<sup>4</sup> W/cm. La temperatura del refrigerante fue de 40°C.

Tabla 5: Comparación de las predicciones de MAIA con las de PLACA

|       | T. vaina (rango) | T. cent. Máxima (rango) | Capa de óxido final (µm) | Espesor de la capa de interacción (µm) |
|-------|------------------|-------------------------|--------------------------|--|
| MAIA  | 126-150          | 135 - 215               | 33                       | 11 – 11.5                              |
| PLACA | 131 - 182        | 141-212                 | 29.88                    | 15.19                                  |

En la **Figura 6** puede observarse la distribución de temperaturas exterior a la placa y central en dos tiempos de quemado. Se observa cómo, para el tiempo final, las temperaturas son mucho más elevadas debido al crecimiento de la capa de óxido y del producto de reacción UMo-Al, de baja conductividad.

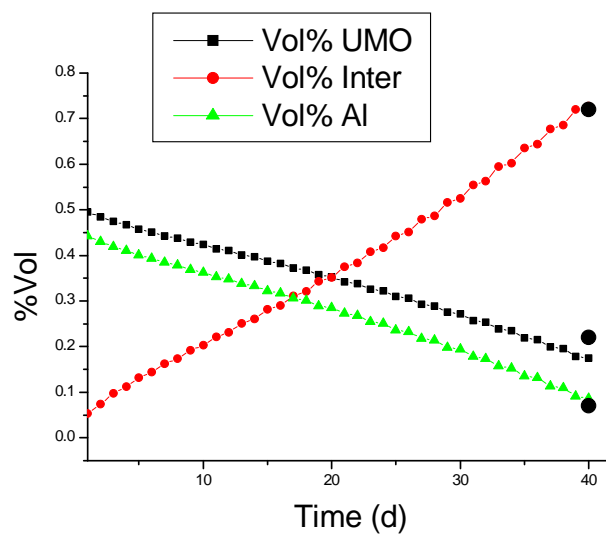


Figura 7: Volumen de Al,UMo y capa de interacción en función del tiempo.

Tabla 6: Datos experimentales y predichos por los códigos MAIA y PLACA

|       | Espesor de la capa de Interac. (µm) | UMo (%) | Capa de interacc. (%) | Al (%) | Porosidad (%) |
|-------|-------------------------------------|---------|-----------------------|--------|---------------|
| PIE   | 5.5                                 | 58      | 37                    | 3.9    | 1.1           |
| MAIA  | 3.5                                 | 57      | 32                    | 11     | 0             |
| PLACA | 3.2                                 | 51      | 41                    | 10     | 0.02          |

En la **Figura 7** se observa el porcentaje en volumen de combustible, intermetálico y aluminio de la matriz predicho numéricamente a lo largo de los 40 días del experimento. Los círculos negros son los resultados experimentales finales medidos.

La **Figura 8** muestra el porcentaje de *swelling* total, dado por el combustible y por el intermetálico.

El experimento IRIS 1 se realizó en el reactor OSIRIS como parte de una serie de experimentos del grupo francés de desarrollo de UMo [24]. El combustible es construido sobre la base de polvos triturados por lo que las partículas de combustible poseen una geometría irregular de alta porosidad de fabricación que ronda el 13%. La densidad de uranio es de  $8.3 \text{ g cm}^{-3}$  y las placas fueron construidas con más de 50% en volumen de UMo 7 y 9 w%, respectivamente.

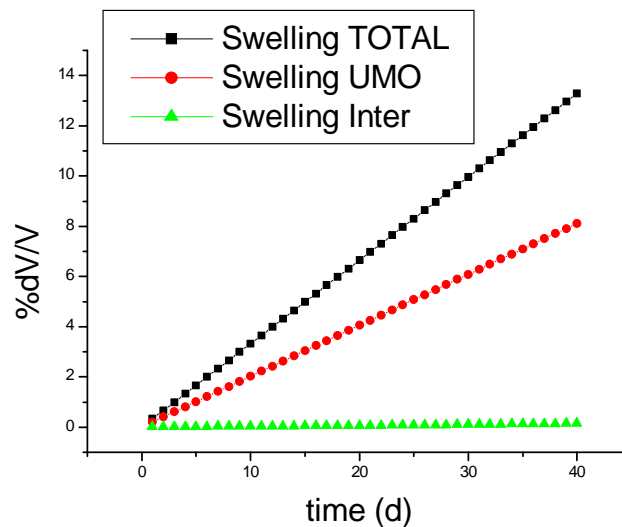


Figura 8: Hinchado del UMo y de la capa de interacción en función del tiempo

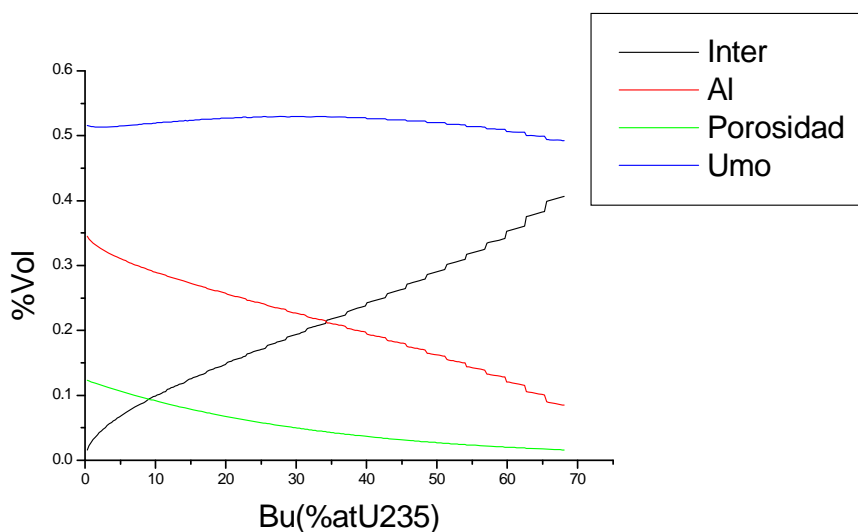
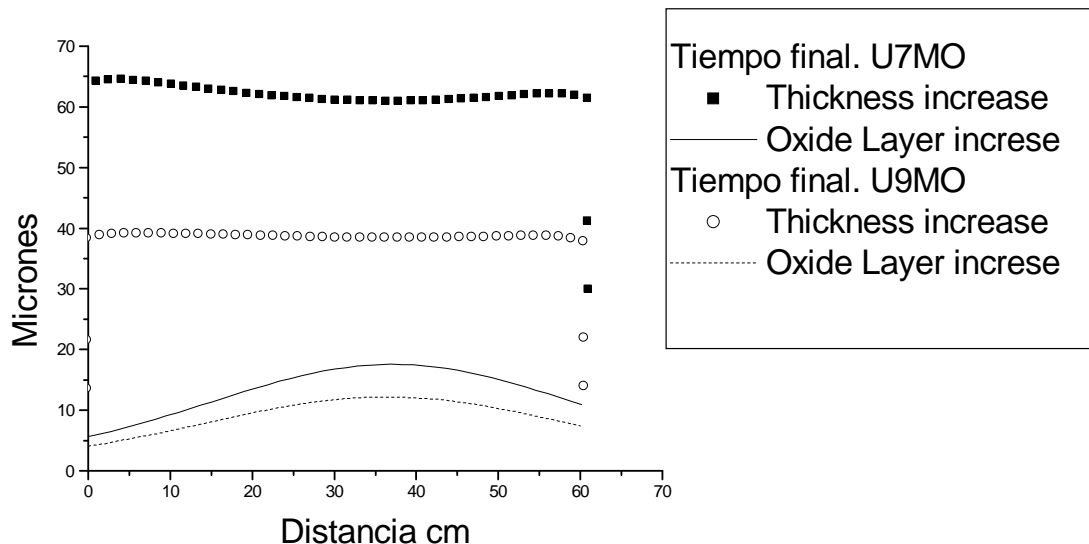


Figura 9: Volúmenes de las diferentes fases en función del quemado.

La **Figura 9** presenta la variación de los diferentes porcentajes de volúmenes en función del quemado en átomos de  $U^{235}$ . PLACA, al igual que MAIA, subestima el espesor de la capa de interacción y da más peso a la zona de crecimiento hacia la partícula combustible que hacia el aluminio. Evidentemente la reacción interdifusiva no está correctamente representada por difusión de Al en la partícula combustible y no es una aproximación correcta. Actualmente se está trabajando en mejorar ese aspecto del código.



*Figura 10: Espesor de la placa y espesor de la capa de óxido a lo largo de la dirección longitudinal para dos tiempos de irradiación.*

La **Figura 10** muestra el perfil de deformación y el aumento de la capa de óxido a lo largo de la dirección  $z$  de la placa predicho numéricamente para las dos composiciones de combustible de UMo. Al final de la irradiación los resultados medidos para el espesor de la placa fueron  $77 \mu\text{m}$  (5.9 %) y  $51 \mu\text{m}$  (4.4 %), respectivamente, para U-7Mo y U-9Mo.

## Conclusiones

Los resultados preliminares obtenidos utilizando los códigos PLACA y DPLACA en gran concordancia con los resultados experimentales y con los arrojados por otros códigos [23,25] nos alientan a continuar con el desarrollo de sus dos versiones. DPLACA requiere ser mejorado y comparado con otros códigos de similares características así como con los datos provenientes de reactores de investigación en operación. En su versión monolítica, PLACA deberá ser contrastado con los futuros resultados experimentales de placas monolíticas actualmente en proceso de irradiación.

## Referencias

- [1] J. E. Matos, J. L. Snelgrove, Properties of fuel meat materials, Appendix I-1, IAEA TECDOC 643, Research reactor core conversion guidebook, April 1992
- [2] M. K. Meyer, G. L. Hofman, Properties of U-Mo Alloy dispersion fuel, IAEA Technical Committee on the Development of High Density U-Mo Dispersion fuels., 2003, Vienna
- [3] S. L. Hayes, M. K. Meyer, G. L. Hofman, R.S. Strain. Postirradiation examination of high-density uranium alloy dispersion fuels.



- [4] N. Arkhanhelsky, Russian Program of Irradiation test and post-Irradiation Experiments of full-scale fuel assemblies on the base of U-Mo fuel, IM on RERTR, 2004, Vienna
- [5] T. H. Newton, M. S. Kazimi, E.E. Pilat, Z. Xu, Preliminary investigation of the use of monolithic U-Mo fuel in the MTR reactor, IM on RERTR, Oct 2003, Chicago
- [6] G. L. Hofman, S. L. Snelgrove, Materials Science and Technology, Chapter 2, Dispersion fuels. J. of Nuclear Materials, Vol 10, part 1. B.R.T. Frost, VCH
- [7] M. Ugajin, A. Itoh, M. Akabori, N. Ooka, Y. Nakakura, Irradiation behavior of high uranium-density alloys in plate fuels, J. of Nuclear Materials, 254 (1998), p. 78-83.
- [8] Development status of metallic, dispersion and non-oxide advanced and alternative fuels for power and research reactor, IAEA TECDOC 1374, chapter 6, Sept 2003
- [9] K. Kim, J. Park, Ch. Kim, G. L. Hofman, M. K. Meyer, Irradiation behavior of atomized U-10w% Mo alloys aluminium matrix dispersion fuel meat at low temperature. Nucl. Eng. and Des. 211 (2002), p. 229-235
- [10] G. L. Hofman, Crystal structure stability and fission gas swelling in intermetallic uranium compounds, J. of Nuclear Materials, 140 (1986), p. 256-263
- [11] D. Yorio, A. Denis, A. Soba, O. Beuter, A. Marajofsky, Utilización de pastillas y barras de sección rectangular delgada en el diseño de blanco de irradiación. AATN, 2003.
- [12] J. Rest, J. L. Snelgrove, G. L. Hofman, DART: model for thermal conductivity of U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>-Aluminium dispersion fuel. 18th IM on RERTR, Sept 1995, Paris
- [13] S. L. Hayes, M. K. Meyer, G. L. Hofman, J. L. Snelgrove, U-Mo/Al dispersion fuel modeling, IM on RERTR, 2004, Vienna.
- [14] L. P. Kollar, Approximate analysis of the temperature induced stresses and deformations of composite shells. Journal of Composite Materials, vol 28, 5, 1994
- [15] M. K. Meyer, G. L. Hofman, Properties of U-Mo Alloy dispersion fuel, IAEA Technical Committee on the Development of High Density U-Mo Dispersion fuels., 2003, Vienna, Austria
- [16] I.I. Konovalov, Basic properties of fuel determining its behavior under irradiation, IM on RERTR, Oct 2000, Las Vegas, USA.
- [17] Stora, J. Nucl. Tech., 1973
- [18] P. Cartwright, J. Markgraf, F. J. Wijtsma, Fabrication experience, inspection and irradiation programme for 2 LEU silicide elements fabricated by UKAEA for irradiation in HFR (Petten, NL). 19th IM on RERTR, Oct 1996, Seoul, Korea.
- [19] G. L. Hofman, M. K. Meyer, J. Park, Observation on the irradiation behavior of U-MO alloy dispersion fuel, IM on RERTR, Oct 2000, Las Vegas, USA.
- [20] L. D. Landau and E.M. Lifshitz, Theory of Elasticity. Pergamon Press, 1959.
- [21] G. L. Hofman, M. K. Meyer, Progress in irradiation performance of experimental Uranium-Molybdenum dispersion fuels, IM in RERTR, Nov 2002, Bariloche, Argentina.
- [22] R. Saliba, H. Taboada, M. Moscarda, J. Rest, DART-TM, A thermomechanical version of DART for LEU VHD dispersed and monolithic fuel analysis.
- [23] V. Marelle, F. Huet, Thermo-Mechanical modelling of U-Mo fuels with MAIA
- [24] F. Huet, V. Marelle, J. Noirot, P. Sacristan, P. Lemoine, Full-sized plates irradiation with High UMo fuel loading. Final results of IRIS 1 Experiments, IM on RERTR, Oct 2003, Chicago, USA.
- [25] A. Olson, The PLTEMP V2.1 code, IM on RERTR, Oct 2003, Chicago.