

MODELIZACIÓN DE LA CONDUCTIVIDAD TÉRMICA DEL UO_2 Y $(U,Gd)O_2$ BAJO IRRADIACIÓN. IMPLEMENTACIÓN EN EL CÓDIGO DIONISIO

MODELLING THE THERMAL CONDUCTIVITY OF UO_2 AND $(U,Gd)O_2$ UNDER IRRADIATION. IMPLEMENTATION INTO THE DIONISIO CODE

M. E. González, A. Denis, A. Soba

Centro Atómico Constituyentes – Comisión Nacional de Energía Atómica
Av. General Paz 1499 - (B1650KNA) -San Martín - Argentina

Recibido: 31/10/2013; aceptado: 03/11/2014

En este trabajo se presenta una expresión que describe la conductividad térmica del dióxido de Uranio con agregado de Gadolinio, teniendo en cuenta la degradación inducida por el quemado alcanzado en el reactor a lo largo del ciclo de operación. El modelo propuesto es comparado con datos experimentales de conductividad e implementado en el código DIONISIO, a fin de calcular el perfil de temperatura en una pastilla de combustible nuclear.

Palabras Claves: conductividad térmica, quemado, combustible nuclear, reactor

In this paper a model that describes the thermal conductivity of Gadolinium doped Uranium dioxide is presented, taking into account the burnup induced degradation through the fuel operating cycle in the reactor. The proposed model is compared with conductivity experimental data and implemented into the DIONISIO code, in order to calculate the temperature profile in a nuclear fuel pellet.

Key Words: thermal conductivity, burnup, nuclear fuel, reactor

I. INTRODUCCIÓN

En las pastillas combustibles para reactores nucleares de potencia, por lo general de UO_2 , la conductividad térmica es función no sólo de la temperatura, sino también del grado de quemado o *burnup*, porosidad, estequiometría, contenido de otras especies como Pu o Gd, etc. Los códigos de simulación de comportamiento de combustibles necesitan contar con una expresión ajustada de la conductividad térmica a lo largo del proceso de irradiación, a fin de lograr una predicción acertada de la distribución de temperatura en el sistema.

En este trabajo se evaluaron diferentes modelos de conductividad térmica de combustibles nucleares, como UO_2 , $(U,Pu)O_2$ y $(U,Gd)O_2$ presentes en la literatura, además de numerosos conjuntos de datos experimentales.

Sobre esta base, se propone una expresión que describe la conductividad térmica en función de la temperatura, teniendo en cuenta el efecto del quemado alcanzado y del contenido inicial de Gd en el combustible.

La expresión obtenida se incluye en el programa DIONISIO^{1,2}, el cual simula el comportamiento térmico y mecánico del combustible, bajo condiciones de operación normal en el reactor. Mediante archivos de

entrada se especifican diversas características de la barra combustible y de los materiales que la conforman, así como la historia de potencia que define el régimen de operación.

II. DESARROLLO

A partir de la revisión bibliográfica llevada a cabo, se recopilaron diversos modelos de conductividad térmica de UO_2 publicados. En base a esto, se seleccionaron aquellos cuya fundamentación fuera físicamente adecuada. La expresión básica de la conductividad térmica de un material cristalino, que tiene la forma $(A+BT)^{-1}$, representa la contribución de los fonones a través los fenómenos de scattering fonón-defecto y fonón-fonón. Sin embargo, dependiendo del material y rango de temperatura que se estudie, esta expresión puede apartarse en forma notable de los resultados experimentales. Por este motivo, se han desarrollado diferentes ecuaciones empíricas que intentan reproducir dichos valores. En general, conservan la forma fundamental mencionada (p. ej. el modelo de Fink³) introduciendo las alteraciones del material, a través de modificaciones adecuadas de sus parámetros (Ohira e Itagaki⁴). Estas alteraciones pueden ser producidas por

megonzal@cnea.gov.ar

el quemado, así como por el dopado del UO_2 con elementos como Gd⁵.

Razones de orden económico imponen la tendencia a incluir en los combustibles una mayor carga del isótopo físil ^{235}U (enriquecimiento). Para evitar el exceso de reactividad que esto conlleva al comienzo del quemado del combustible, suele incluirse algún absorbedor de neutrones, como el gadolinio, que va consumiéndose durante la irradiación. Naturalmente, su presencia en la red del UO_2 tiene un efecto sobre sus propiedades, en particular las térmicas.

Asimismo se producen modificaciones al someter el material a irradiación (por la aparición progresiva de fragmentos de fisión y de poros). La irradiación neutrónica produce también la aparición de gran cantidad de defectos en la red cristalina del material, alterándose los modos de vibración en la red a medida que el quemado aumenta. Es por esto que su efecto se incorpora a la expresión de conductividad a través de la componente de fonones.

Con todos estos efectos incluidos, la expresión de la conductividad térmica adoptada para dióxido de Uranio, que contempla los efectos del quemado y del agregado de Gadolinio, $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ es

$$k(T) = (1 - p^{2/3}) \left[\frac{1}{A + BT + CT^2 + [a_{Gd} w_{Gd} (b_{Gd} - T)] + h_D(T, Bu)} + (1 - c_{Gd} w_{Gd}) \frac{D}{T^{5/2}} \exp\left(-\frac{E}{T}\right) \right] \left[\frac{W}{\text{cm}^\circ\text{C}} \right] \quad (1)$$

donde p es la fracción de porosidad en volumen del material, T la temperatura del mismo, w_{Gd} la fracción en peso de Gd, b_{Gd} y c_{Gd} son constantes de ajuste, asignadas de acuerdo a los datos disponibles de contenido inicial de Gd. La función h_D da cuenta de los efectos que tiene la evolución del quemado (Bu) en la conductividad térmica. La misma se obtuvo comparando los valores arrojados por la expresión (1) con los datos de conductividad térmica disponibles para distintos grados de quemado, ajustándose al conjunto de datos expuesto en la Figura 1.

El primer término de la expresión describe la contribución de fonones a la conducción del calor, dominante a temperaturas de hasta 1500°C . El segundo representa la contribución ambipolar, que se hace notable en el rango de temperatura comprendido entre 1500°C y el punto de fusión del material.

III. RESULTADOS

Efecto del quemado alcanzado

Existen en la literatura datos experimentales de conductividad térmica obtenidos a partir de mediciones de difusividad. En general, para temperaturas en el rango $0^\circ\text{C} - 1600^\circ\text{C}$, todos los autores presentan resultados

similares, observándose una degradación de la conductividad térmica con el aumento de la temperatura. En el rango de altas temperaturas, $1600^\circ\text{C} - 2500^\circ\text{C}$, los datos muestran una tendencia creciente, aunque se hace notable su dispersión. Superpuesto con este comportamiento en función de la temperatura, el quemado del combustible provoca una disminución de la conductividad, más marcada en el rango inferior de temperaturas, como se observa también en la Figura 1.

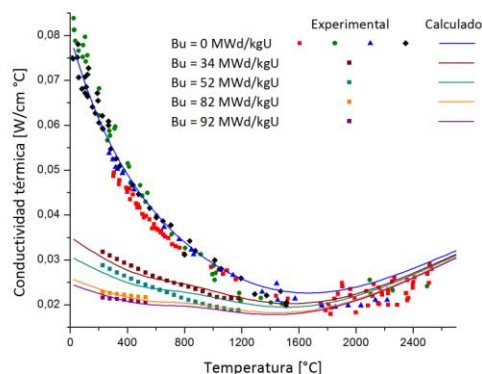


Figura 1. Efecto del quemado.

Efecto del contenido de Gd

En la literatura se exponen valores de conductividad térmica de UO_2 sin irradiar, con contenido de Gd entre 3 y 10 w%. La presencia de átomos de Gd en la red cristalina del UO_2 degrada la conductividad térmica del material, según se aprecia en la Figura 2.

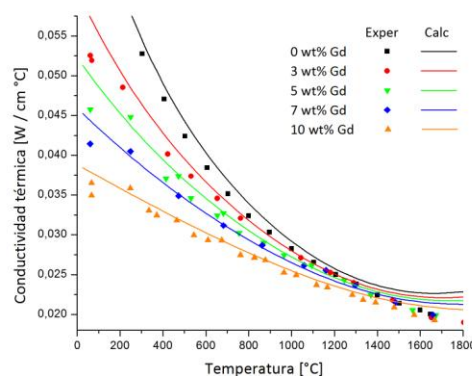


Figura 2. Efecto del contenido de Gd.

Una vez comprobada la buena calidad del ajuste que se logra con la expresión (1) a los datos de conductividad térmica, se procedió a incluirla como una nueva subrutina en el código DIONISIO, que simula el comportamiento de barras combustibles en condiciones de operación. Se destaca que la buena calidad del cálculo térmico resulta crucial para la buena simulación pues tiene efecto sobre todos los parámetros del sistema.

Temperatura central: comparación entre mediciones y cálculos

Se simularon las condiciones de experimentos recopilados en la base de datos del OIEA, en particular se emplearon datos obtenidos en el Riso National Laboratory de Dinamarca⁶. Las historias de potencia consisten en rampas y períodos de potencia constante. En la Figura 3 se comparan los valores de temperatura calculados con los medidos en el centro de la barra, para diferentes casos de este experimento. Se comprueba que el 85 % de los puntos se aparta en menos de 100°C de la línea de acuerdo perfecto. Los que presentan mayor desviación corresponden a las rampas de potencia, mientras que para los períodos de potencia constante, el acuerdo es excelente.

Comparación con otros códigos de simulación

Se simularon las condiciones del experimento PRIMO⁷, también de la base de datos del OIEA, típicas de un reactor PWR, con una potencia lineal en el rango de 130 W/cm – 250 W/cm. En la Figura 4 se muestra la evolución de la temperatura central según las predicciones del código DIONISIO y de diferentes códigos similares, en uso en otros países, diseñados para simular el comportamiento del combustible en operación.

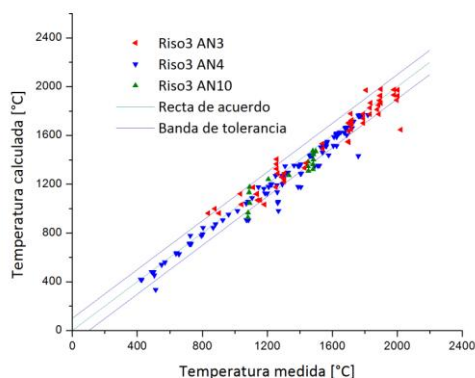


Figura 3. Temperatura central calculada vs. medida

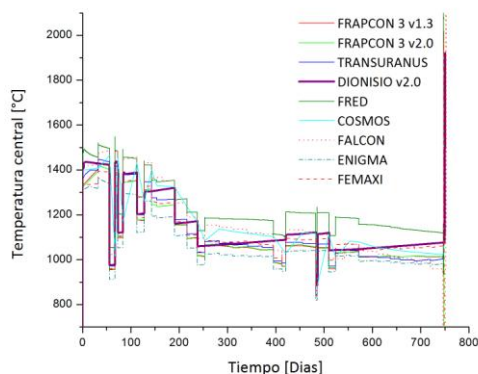


Figura 4. Evolución de la temperatura central de la pastilla, calculada mediante DIONISIO y otros códigos.

IV. CONCLUSIONES

El buen acuerdo entre los datos experimentales y los resultados de los cálculos revela que la inclusión en la conductividad térmica de la dependencia con el contenido de Gd y con el grado de quemado, con la forma funcional y los parámetros de ajuste elegidos, es acertada.

Si bien los datos de conductividad térmica correspondientes a alto quemado (> 60 MWd/kgU) son aún escasos y sólo contemplan un rango de temperatura limitado, los cálculos de temperatura central de la barra son coherentes con los resultados obtenidos mediante otros códigos similares así como con las mediciones efectuadas en operación, para períodos de tiempo prolongados⁷.

La estructura modular del código DIONISIO permitió implementar eficientemente el modelo de conductividad térmica propuesto, incorporándolo como una nueva subrutina

Esta incorporación permite expandir el ámbito de aplicación del código DIONISIO, incluyendo ahora combustibles con venenos consumibles y ampliando el rango de quemado.

V. REFERENCIAS

- 1 – A. Soba, A. Denis, *Model of fracture for the Zry cladding of nuclear fuel rods included in the code DIONISIO 1.0*, Nuclear Engineering and Design, 238 (2008) 3292
- 2 – A. Soba, Denis, *Simulation with DIONISIO 1.0 of thermal and mechanical pellet-cladding interaction in nuclear fuel rods*, J. Nucl. Mater. 374 (2008) 32
- 3 – J. K. Fink, *Review: Thermophysical properties of Uranium Dioxide*, J. Nucl. Mater. 279 (2000) 1
- 4 – L. Jernkvist, A. Massih, *Analysis of the effect of UO₂ high burnup microstructure on fission gas release*, SKI Report 02:56, Swedish Nuclear Power Inspectorate, Dec. 2002, App. A-C
- 5 – M. Hirai, S. Ishimoto, *Thermal diffusivities and thermal conductivities of UO₂- Gd₂O₃*, J. Nucl. Sci. and Tech. 28[11] (1991) 995
- 6 – The third Riso fission gas project, *Riso-FGP3-ANX/GEX*, Cases for FUMEX-III, V1 (2008)
- 7 – Mixed Oxide (MOX) fuel performance benchmark – Summary of the results of the PRIMO MOX rod BD8 – OECD/NEA 2009