

(17) 2 ejempl.

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE MEXICO
FACULTAD DE CIENCIAS



**COMPORTAMIENTO DE PRODUCTOS GASEOSOS
DE FISION EN COMBUSTIBLES DE REACTORES
RAPIDOS A BASE DE OXIDO DE URANIO
Y PLUTONIO**

T E S I S
QUE P R E S E N T A
F I S I C O
P R E S E N T A

ALBERTO ELIAS GALINDO BLANCO

MEXICO, D. F.

JUNIO DE 1961



Universidad Nacional
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

Biblioteca Central



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

TESIS CON FALLA DE ORIGEN

I N D I C E

	Pág.
CAPITULO I	1
Introducción	1
CAPITULO II	6
2.1 Producción de Átomos de Gas.	7
2.2 Formación de Burbujas.	12
2.3 Condición de Equilibrio y Ecuación de Estado del Gas Contenido en las Burbujas.	21
CAPITULO III	31
3.1 Mecanismos de Difusión.	32
3.2 Coalescencia de Burbujas.	53
3.3 Resolución de Burbujas.	58
3.4 Interacción de Burbujas con Dislocaciones y Fronteras de Grano.	63
CAPITULO IV	70
Modelos que Estudian el Hinchamiento y el Escape de Gas en el Combustible Nuclear.	70
CAPITULO V	97
Conclusiones.	97
REFERENCIAS	100

CAPITULO I

INTRODUCCION

Durante la irradiación del combustible nuclear (U, Pu) O₂ u - Oxido de Uranio y Plutonio en un reactor nuclear rápido, se presentan distintos fenómenos de los cuales dos de los más impor-
tantes son, el escape de gas y el hinchamiento o aumento de vo-
lumen del material combustible. Esto se debe a que algunos de
los productos de fisión son isótopos de Xe y Kr, estables o de
vida media muy grande respecto a la vida del combustible y que
presentan, debido a que son inertes, poca solubilidad con el
material combustible. Por lo tanto, al moverse dentro de éste
forman agrupaciones de átomos de gas.

Estas agrupaciones de átomos de gas, que desde ahora identifi-
caremos como burbujas esféricas de gas inerte, se ven involucra-
das en una serie de fenómenos como : crecimiento por aumento del
número de vacancias en la superficie de la burbuja; interacción
entre ellas de tal manera que por coalescencia de dos burbujas
aparezca una tercera; destrucción de las burbujas por fragmentos
de fisión, y por último, para escapar del combustible interac-
ción con dislocaciones y fronteras de grano.

Se plantean combinaciones de estos fenómenos con el objeto de -
establecer bajo condiciones normales de operación o bien de ac-
cidentes en un reactor nuclear rápido, la variación en el tiem-
po de las concentraciones de burbujas de distintos tamaños, pre
sentes tanto en la matriz del combustible y defectos de éste,
(como dislocaciones y fronteras de grano), para determinar en
base a la suma de sus volúmenes, el hinchamiento del combustible

y finalmente, dada la movilidad de las burbujas, el escape de gas.

Las razones por las que es importante estudiar estos fenómenos son que: el gas que escapa del material combustible, provoca es fuerzas en la camisa del combustible que pueden provocar una fa lla en su estructura, y en lo que se refiere al hinchamiento; cabe la posibilidad de una falla provocada por la interacción del combustible con la camisa y además, un aumento en la temperatura del combustible puesto que las burbujas disminuyen la - transferencia de calor generado en su interior.

En el Capítulo II de esta tesis, se determina la rapidez de pro ducción de átomos de gas dado el número de fisiones en el material combustible. Una vez que se establece la presencia de los átomos de gas, se discute la formación de las burbujas y por úl timo, se establece la ecuación de estado del gas contenido por éstas para determinar, dada la temperatura y el número de átomos de gas que contiene, el radio de cualquier burbuja.

En el Capítulo III se analizan los mecanismos de difusión de las burbujas. Se determina el coeficiente de difusión de cada uno de los mecanismos propuestos y se muestra la importancia de conocer el valor más exacto posible del radio de la burbuja dada la fuerte dependencia de los coeficientes de difusión con éste. A su vez, con el coeficiente de difusión, se calcula la velocidad de cualquier burbuja dentro del combustible.

Posteriormente se estudia la coalescencia de burbujas. Este fe

nómeno trata de la interacción de dos burbujas que trae como consecuencia la formación de una tercera. Se determina, una vez que se conoce la probabilidad de formación de burbujas por coalescencia, la variación de las concentraciones de éstas en función del número de átomos que contienen y del tiempo. Cabe aclarar que este fenómeno contribuye al aumento de volumen del combustible.

En seguida se discute el fenómeno denominado "resolución" de las burbujas, que consiste en la destrucción parcial o total de las mismas. Al respecto existen dos modelos que son : la resolución microscópica que se presenta cuando la burbuja pierde sólo un número dado de átomos de gas; y la resolución macroscópica cuando todos los átomos de gas de la burbuja se separan dentro del combustible. Este fenómeno alivia el hinchamiento del material combustible.

Finalmente, se analiza la interacción de burbujas con dislocaciones y fronteras de grano. Dado que la estructura del material combustible no es perfecta las burbujas al moverse dentro de éste, pueden encontrarse con defectos del material combustible como dislocaciones y fronteras de grano. Se observará como estos defectos se oponen al movimiento de las burbujas hasta que alcanzan cierto tamaño. Este fenómeno, al oponerse al escape de gas, contribuye al aumento de volumen del combustible.

En el Capítulo IV se conjugan todos los aspectos vistos en los - Capítulos II y III, ya que se analizan algunos de los modelos que

pretenden calcular el hinchamiento y el escape de gas, del material combustible.

En el Capítulo V se dan las conclusiones y recomendaciones derivadas de éste estudio.

2.1 PRODUCCION DE ATOMOS DE GAS

Durante el proceso de fisión, el núcleo de un elemento pesado se rompe, de una forma no simétrica, en general, en dos fragmentos de distinto número de masa. Dicho proceso se puede lograr con núcleos denominados ffsiles como el U^{233} , U^{235} y Pu^{239} , dado que se produce fisión por interacción con neutrones de cualquier energía, incluyendo la energía cero; o bien, con núcleos denominados fisionables como el Th^{232} y el U^{238} que requieren que el neutrón tenga una energía mayor o igual a la energía de umbral para producir fisión. Desafortunadamente de los materiales ffsiles sólo el U^{235} se encuentra en la naturaleza. Sin embargo, existen también los materiales llamados fértiles como el Th^{232} y U^{238} que interaccionan con neutrones de energías del orden de Kev. y producen captura radiativa que, seguida por una serie de decaimientos, dan lugar al U^{233} y Pu^{239} , respectivamente. Es en este hecho en el que se basan los reactores rápidos de cría ya que su combustible contiene átomos de U^{238} y Pu^{239} que, al sostener una reacción en cadena con neutrones de energía promedio cercana a cientos de Kev., podrán producir fisión en núcleos de Pu^{239} y captura radiativa en U^{238} , con la consecuente producción de Pu^{239} .

El combustible nuclear, que tiene la forma de una barra rígida, está compuesto por una serie de pastillas sólidas sobrepuestas que contienen una concentración dada de átomos

físiles, de tal manera que durante su irradiación, la energía que se libera en las fisiones es aprovechada para producir energía eléctrica. Sin embargo, el combustible es colocado dentro de un cilindro metálico que es buen conductor del calor y mal absorbedor de neutrones, con el propósito de evitar que el combustible durante su irradiación sufra corrosión y erosión por contacto con el refrigerante, además de evitar que escapen productos de fisión. En su conjunto, el combustible junto con la camisa forman la barra de combustible y un grupo de estas, el elemento combustible del reactor. El número, la longitud y el radio de las barras en el elemento combustible varían dependiendo del diseño de cada reactor.

En particular el combustible cerámico Oxido de Uranio y Plutonio, $(U, Pu) O_2$, es utilizado en reactores nucleares rápidos ya que no presenta cambios apreciables en sus dimensiones a las altas temperaturas que se somete y además, es resistente a la radiación o daño producido por fragmentos de fisión en la red cristalina del combustible. Sin embargo, como es un mal conductor del calor, se ve afectado por gradientes de temperatura que sumados a las altas temperaturas en el material combustible causan quebraduras y crecimiento de grano en su interior. En lo que se refiere a los productos gaseosos de fisión que se producen en su interior, conserva la mayor parte de los mismos.

Esto último se menciona porque se puede producir una falla en la camisa, con lo que dejaría de cumplir su función si por ejemplo, durante la irradiación del combustible su presión interna aumenta por los productos gaseosos de fisión que escapan del combustible o bien, por contacto con este a causa de su hinchamiento o aumento de volumen, provocado por los átomos de gas que quedan en su interior.

Regresando al proceso de fisión, se indica en las figuras (2.1.1)⁽¹⁾ la producción (%) de fragmentos de fisión en función de su número de masa.

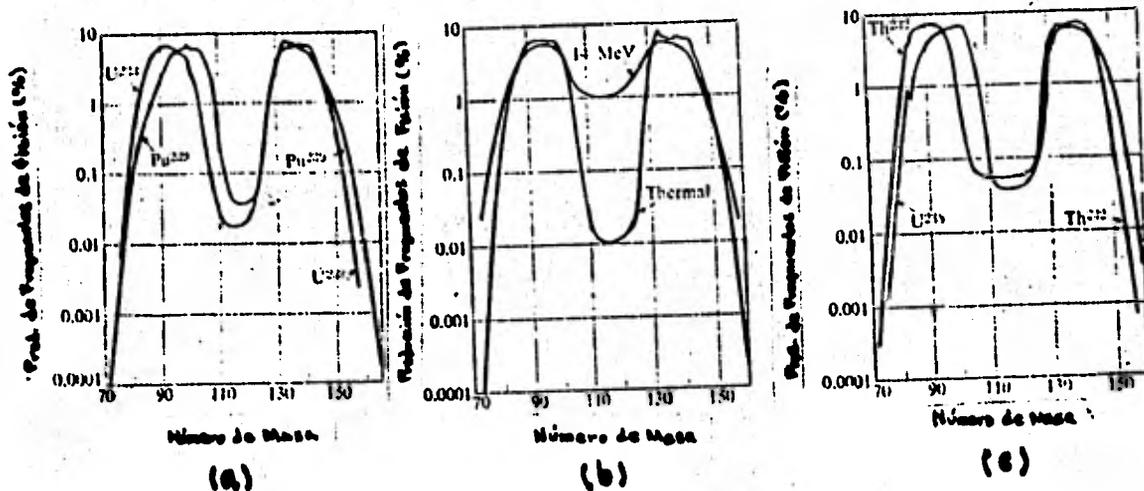


Fig. (2.1.1) Producción de fragmentos de fisión (%), (a) para U^{233} y Pu^{239} con neutrones térmicos, (b) U^{235} con neutrones rápidos y térmicos y (c) Th^{232} U^{238} con neutrones de fisión.

En base a las figuras (2.1.1) se obtienen las tablas - (2.1.1) (a) y (2.1.1) (b)⁽¹⁾ con las producciones (%) totales de átomos de gas inerte para cada tipo de material tomando en cuenta como ya se dijo, aquellos que son estables o de vida media muy grande respecto a la vida del combustible que en el caso de un reactor nuclear rápido no es mayor de 5.5 años.

TABLA (2.1.1) (a)⁽¹⁾

Producción (%) de átomos de gas inerte por fisión de U ²³³ , U ²³⁵ y Pu ²³⁹ con neutrones térmicos.			
	U ²³³	U ²³⁵	Pu ²³⁹
Kr ⁸³	1.17	0.544	0.29
Kr ⁸⁴	1.95	1.0	0.47
Kr ⁸⁵	0.58	0.293	0.127
Kr ⁸⁶	<u>3.27</u>	<u>2.02</u>	<u>0.76</u>
Atomos de Kr	6.97	3.857	1.647
Xe ¹³¹	3.39	2.93	3.78
Xe ¹³²	4.64	4.38	5.26
Xe ¹³⁴	5.95	8.06	7.47
Xe ¹³⁵	<u>6.63</u>	<u>6.46</u>	<u>6.63</u>
Atomos de Xe	<u>20.61</u>	<u>21.83</u>	<u>23.14</u>
Produccion Total	27.58	25.687	24.787

TABLA (2.1.1) (b)⁽¹⁾

Produccion (%) de átomos de gas inerte por fisión de U ²³⁸ , Th ²³² con neutrones rápidos y de U ²³⁵ con neutrones de 14 Mev.			
	U ²³⁸	Th ²³²	U ²³⁵
Kr ⁸³	0.40	1.99	
Kr ⁸⁴	0.85	3.65	
Kr ⁸⁵	0.153	0.85	
Kr ⁸⁶	<u>1.38</u>	<u>6.00</u>	
Atomos de Kr	2.783	12.49	
Xe ¹³¹	3.2	1.62	4.3
Xe ¹³²	4.7	2.87	5.0
Xe ¹³⁴	6.6	5.38	5.9
Xe ¹³⁵	<u>5.9</u>	<u>5.65</u>	—
Atomos de Xe	<u>20.4</u>	<u>15.52</u>	<u>15.2</u>
Producción Total	23.183	28.01	15.2

Tomando en cuenta los isótopos de gas que son inertes y estables, denotaremos la producción (%) total por la suma $G = Xe + Kr$. De esta manera, si tomamos \dot{F} fisiones/cm³. - seg. la rapidez de producción de átomos de gas en el material combustible estará dado como :

Rapidez de producción de átomos de gas =

$$GF \frac{\text{átomos de gas}}{\text{cm}^3 \cdot \text{seg.}} \quad (2.1.1)$$

A continuación veremos como éstos átomos de gas, por encuentros casuales en el material combustible forman agrupaciones que, desde ahora, serán consideradas como burbujas esféricas de gas en el sólido.

2.2 FORMACION DE BURBUJAS

La formación de las burbujas de átomos de gas durante la irradiación del combustible se inicia con la etapa de nucleación, o constitución de agrupaciones de átomos de gas lo suficientemente estables para sobrevivir y crecer como burbujas de gas. Se determinan, dependiendo del lugar en que se forman estas agrupaciones, dos tipos de nucleación: homogénea, por encuentros casuales de los átomos de gas en regiones del material libre de defectos, y heterogénea, por acumulación en dislocaciones y grupos de vacancias. En ambos casos se considera que la formación de núcleos de burbujas, o agrupaciones de átomos de gas lo suficientemente estables para sobrevivir en el material combustible, se puede expresar en términos de las siguientes interacciones :

$$\begin{aligned} A_1 + A_1 &= A_2 \\ A_2 + A_1 &= A_3 \\ \cdot & \quad \cdot \quad \cdot \\ \cdot & \quad \cdot \quad \cdot \\ \cdot & \quad \cdot \quad \cdot \\ A_{m-1} + A_1 &= A_m \end{aligned}$$

donde A_1 es un átomo de gas, A_2, \dots, A_m son agrupaciones de 2, 3, ..., m átomos de gas y m, el número mínimo de átomos de gas que debe contener el núcleo de una burbuja. Se puede observar en ésta última relación que las diferentes interacciones son con átomos de gas debido a que en un principio, cuando el material comienza a ser irradiado, las concentraciones de agrupaciones de dos o más átomos de gas son despreciables respecto a la concentración de átomos de gas. Dado que los fragmentos de fisión introducen en gran parte los grupos de vacancias por interacción con la estructura cristalina del material combustible, haremos un análisis de la forma en que favorecen la formación de las burbujas y posteriormente en el Capítulo III, el caso contrario cuando provocan la destrucción parcial o total de las mismas.

Como se había visto, al producirse la fisión en un átomo aparecen los fragmentos de fisión, a los cuales se les puede asociar al nacer una masa atómica y energías determina-

das. Si el caso es, por ejemplo, el de una fisión de Pu^{239} por interacción con un neutrón de energía cero, es sencillo deducir que la energía de cada fragmento se puede encontrar con la ecuación (2.2.1), que se obtiene en base a la conservación de la energía y del impulso durante dicho proceso.

$$E_{f.f.1} = \frac{\Delta E}{1 + \frac{M_1}{M_2}} \quad (2.2.1)$$

Donde $E_{f.f.1}$ es la energía del fragmento de fisión 1, ΔE es la energía liberada durante la fisión, que se transforma en energía cinética de los fragmentos, y M_1 , M_2 son las masas de los fragmentos 1 y 2 respectivamente.

Dado que para Pu^{239} la energía ΔE liberada en la fisión es de aproximadamente 200 Mev., para masas $M_1 = M_2$ la energía de cada fragmento de fisión será de 100 Mev. El que nazca el fragmento de fisión con ésta energía tan grande, provoca la pérdida de algunos de sus electrones quedando así con una carga positiva. En estas condiciones, el fragmento de fisión al moverse en el sólido pasará cerca de algunos de los átomos de la red. De esta manera veremos como su interacción con los electrones de estos átomos provocará la mayor pérdida de energía, mientras que la interacción con el núcleo las dispersiones más grandes.

Para ver esto más claro, tenemos que los impulsos transversales producidos por el fragmento de fisión en un electrón

y núcleo están dados, respectivamente, por (2):

$$P_{\perp e} = \frac{Z_{f.f.} e^2}{2 \sqrt{\epsilon_0} b_e V_{o.f.f.}} \quad (2.2.2)$$

$$P_{\perp n} = \frac{Z_{f.f.} Z_n e^2}{2 \sqrt{\epsilon_0} b_n V_{o.f.f.}} \quad (2.2.3)$$

donde b_e y b_n son los parámetros de impacto o distancias de máximo acercamiento al electrón y al núcleo, ϵ_0 es la constante de permeabilidad, $Z_{f.f.}$, Z_n número atómico del fragmento de fisión y el núcleo respectivamente, e es la carga del electrón y $V_{o.f.f.}$ la magnitud de la velocidad del fragmento de fisión antes del choque.

Dado que en cada interacción el fragmento de fisión pierde $P_{\perp}^2/2M$ de energía se ve que, ya que los electrones son menos masivos y más numerosos que los núcleos, aquellos se llevan la mayor parte de la energía del fragmento de fisión. A continuación se establecerán varias suposiciones en base a las cuales se construirá un esquema con el fin de ver cómo el fragmento de fisión favorece por un lado, la formación de las burbujas de gas durante el comienzo del quemado del combustible y por otro, la resolución o destrucción de burbujas en etapas posteriores.

SUPOSICIONES⁽³⁾

- 1) El fragmento de fisión perderá la mayor parte de su energía por ionización y excitación de los átomos de la red

mientras que su energía sea mayor que la de ionización E_i , es decir, para :

$$E_{f.f.} > E_i \quad (2.2.4)$$

- 2) Todos los fragmentos con energías menores que la de ionización perderán su energía por choque con los núcleos de los átomos de la red, o sea para :

$$E_{f.f.} < E_i \quad (2.2.5)$$

- 3) El átomo de la red podrá ser desplazado por un fragmento de fisión después de un choque elástico siempre y cuando reciba una energía mayor que E_d , o energía de amarre del átomo en la red.
- 4) Se podrá crear un par de Frenkel, compuesto por una vacancia y un átomo intersticial, siempre y cuando tanto el fragmento de fisión como el átomo de la red, después de la interacción, queden con una energía mayor que E_d . Si éste es el caso, el fragmento de fisión, y el átomo liberado podrán interaccionar con otros átomos de la red cercanos, con la posibilidad de crear más pares de Frenkel. Fig. (2.2.1) (a) y Fig. (2.2.1) (b).

· su energía sea mayor que la de ionización
, para :

$$E_i \quad (2.2.4)$$

- 2) Todos los fragmentos con energías menores que la de ionización perderán su energía por choque con los núcleos de los átomos de la red, o sea para :

$$E_{f.f.} < E_i \quad (2.2.5)$$

- 3) El átomo de la red podrá ser desplazado por un fragmento de fisión después de un choque elástico siempre y cuando reciba una energía mayor que E_d , o energía de amarre del átomo en la red.
- 4) Se podrá crear un par de Frenkel, compuesto por una vacancia y un átomo intersticial, siempre y cuando tanto el fragmento de fisión como el átomo de la red, después de la interacción, queden con una energía mayor que E_d . Si éste es el caso, el fragmento de fisión, y el átomo liberado podrán interaccionar con otros átomos de la red cercanos, con la posibilidad de crear más pares de Frenkel. Fig. (2.2.1) (a) y Fig. (2.2.1) (b).

mientras que su energía sea mayor que la de ionización E_i , es decir, para :

$$E_{f.f.} > E_i \quad (2.2.4)$$

- 2) Todos los fragmentos con energías menores que la de ionización perderán su energía por choque con los núcleos de los átomos de la red, o sea para :

$$E_{f.f.} < E_i \quad (2.2.5)$$

- 3) El átomo de la red podrá ser desplazado por un fragmento de fisión después de un choque elástico siempre y cuando reciba una energía mayor que E_d , o energía de amarre del átomo en la red.
- 4) Se podrá crear un par de Frenkel, compuesto por una vacancia y un átomo intersticial, siempre y cuando tanto el fragmento de fisión como el átomo de la red, después de la interacción, queden con una energía mayor que E_d . Si éste es el caso, el fragmento de fisión, y el átomo liberado podrán interaccionar con otros átomos de la red cercanos, con la posibilidad de crear más pares de Frenkel. Fig. (2.2.1) (a) y Fig. (2.2.1) (b).

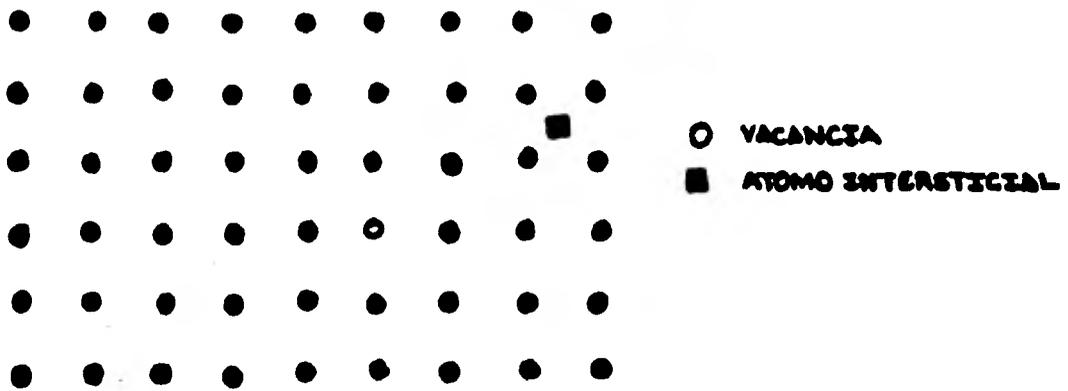


Fig. (2.2.1)(a) Representación de un par de Frenkel, compuesto por una vacancia y un átomo intersticial.

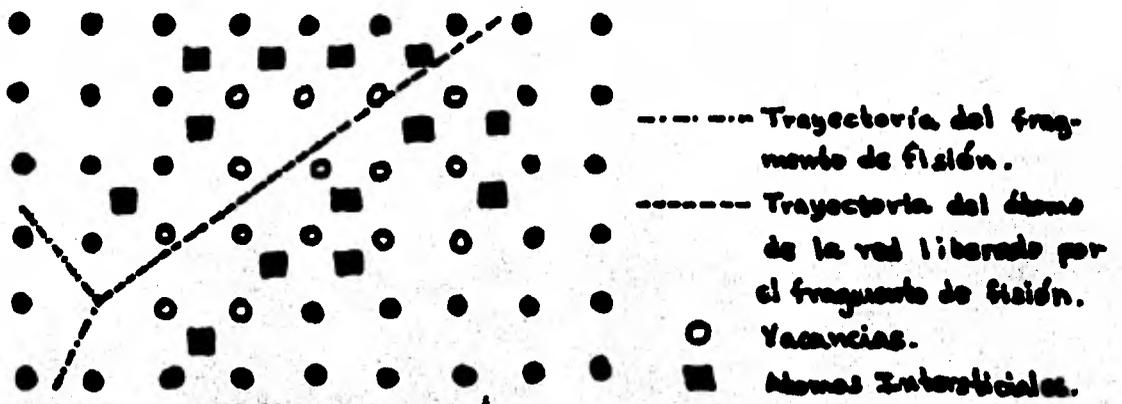


Fig.(2.2.1) (b) Representación de la creación de pares de Frenkel por un fragmento de fisión y un átomo de la red, liberado a su vez de su posición de equilibrio por el fragmento de fisión.

Para aclarar las etapas por las que pasa un fragmento de fisión durante su interacción con el material combustible se elabora el esquema de la figura (2.2.2).

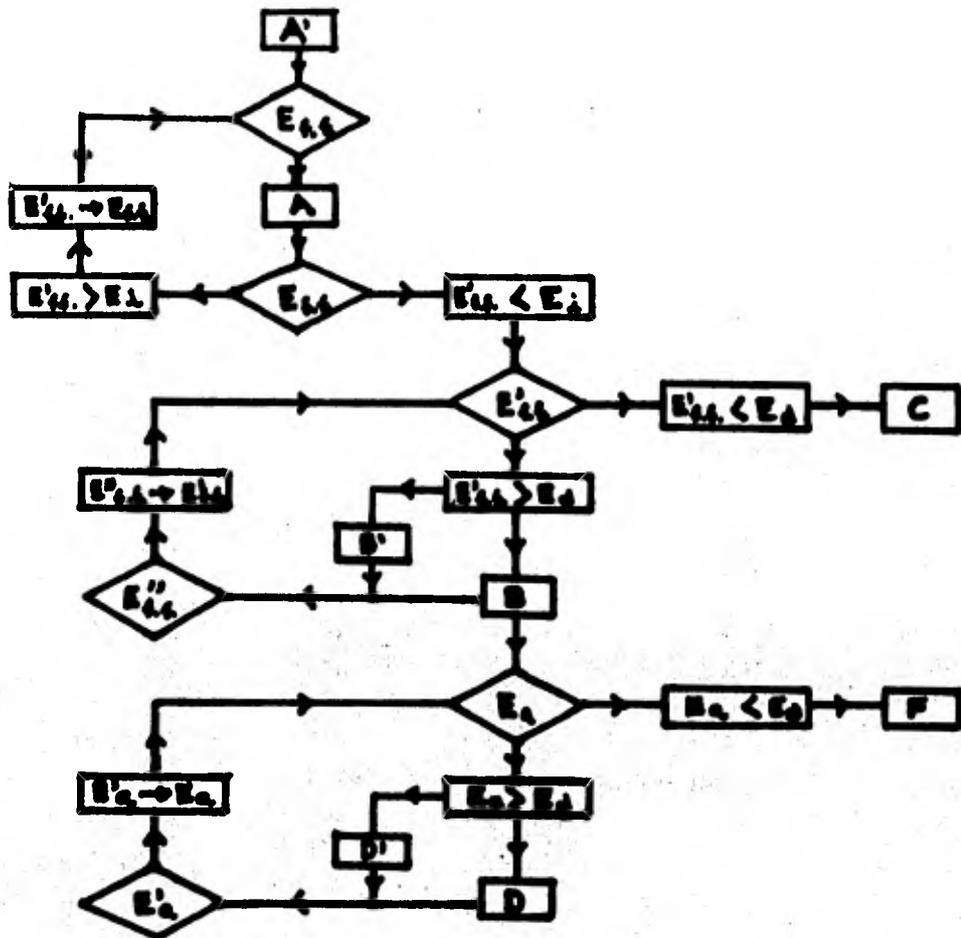


Fig. (2.2.2) Interacciones de un fragmento de fisión con el material combustible. Los significados de las letras se explican en el texto.

Esta figura (2.2.2) se explica de la siguiente forma :

El significado de las energías indicadas en la figura son :

- $E_{f.f.}$: energía del fragmento de fisión al nacer.
- $E'_{f.f.}$: energía del fragmento de fisión durante la etapa de ionización
- $E''_{f.f.}$: energía del fragmento de fisión después de un choque elástico con el núcleo de un átomo de la red.
- E_d : energía de amarre del átomo en la red.
- E_a : energía del átomo primario (átomo de la red desprendido por un fragmento de fisión).
- E'_a : energía del átomo primario después de un choque elástico con el núcleo de otro átomo de la red.

- A') Aparecen dos fragmentos de fisión con energía de 100 Mev., carga positiva y número de masa 115.
- A) Mientras que $E'_{f.f.} > E_i$, el fragmento de fisión perderá su energía por ionización y excitación de los electrones de los átomos de la red cristalina del combustible.
- B) El fragmento de fisión con una energía $E'_{f.f.} > E_d$, tiene un choque elástico con el núcleo de un átomo de la red creando un par de Frenkel. Sigue perdiendo su energía de esta manera o como en B' hasta que $E'_{f.f.} < E_d$ y llega a C.
- B') El fragmento de fisión con $E'_{f.f.} > E_d$ tiene un choque elástico con el núcleo de un átomo de la red sin crear

par de Frenkel.

- C) El fragmento de fisión tiene una energía $E'_{f.f.} < E_d$ de tal manera que por choques elásticos con núcleos de los átomos de la red, acaba de perder toda su energía hasta quedar en reposo sin producir más pares de Frenkel.
- D) El átomo primario con una energía $E_a > E_d$, tiene un choque elástico con el núcleo de un átomo de la red creando un par de Frenkel. Sigue perdiendo su energía de esta manera o como en D' hasta que $E_a < E_d$ y llega a F.
- D') El átomo primario con $E_a > E_d$, tiene un choque elástico con el núcleo de un átomo de la red sin crear par de Frenkel.
- F) El átomo primario tiene una energía $E_a < E_d$ de tal manera que por choques elásticos con núcleos de los átomos de la red acaba de perder toda su energía hasta quedar en reposo sin producir más pares de Frenkel.

Una vez formado el núcleo de una burbuja se considera que ha terminado la etapa de nucleación y se inicia la de crecimiento. La forma en que esto sucede se verá en el siguiente Capítulo cuando se analice el fenómeno de "coalescencia" de burbujas. Una vez formadas las burbujas se ha-

rá a continuación un análisis del comportamiento del gas - contenido en las burbujas dadas las condiciones de temperatura, presión y volumen a que éste se encuentra.

2.3 CONDICION DE EQUILIBRIO Y ECUACION DE ESTADO DEL GAS CONTENIDO EN LAS BURBUJAS.

Una de las partes que más influye en el diseño de un modelo para calcular el hinchamiento y el escape de gas en el material combustible, es la ecuación de estado del gas contenido en las burbujas. Esto se debe a que por medio de la ecuación de estado se podrá determinar el radio de cada burbuja, para así calcular su tamaño y coeficiente de difusión, con lo cual se puede obtener finalmente el hinchamiento y el escape de gas en el material combustible. Sin embargo, de todas estas burbujas nos interesarán aquellas que estén en equilibrio o sea, que cumplan con la condición (4):

$$P = \frac{2\gamma}{R} \quad (2.3.1)$$

donde P es la presión del gas, γ la tensión superficial del material combustible en cuestión y R el radio de la burbuja.

Como primer paso, consideramos que el gas contenido en las burbujas es ideal, de tal manera que observa la ecuación:

$$PV = n R T \quad (2.3.2)$$

donde P es la presión a la que se encuentra el gas en la burbuja, V volumen ocupado por la misma, n número de átomos

de gas contenido y R la constante universal de los gases. T es la temperatura a la que se encuentra el gas, que consideraremos como la temperatura del material en el punto - en que ésta se encuentra.

A continuación en base a las ecuaciones (2.3.1) y (2.3.2), el radio de una burbuja en equilibrio, con n moles de átomos de gas a una temperatura T resulta ser :

$$R = \left(\frac{3 n R T}{8 \gamma} \right)^{1/2} \quad (2.3.3)$$

Como sabemos, la ecuación de gas ideal es observada por un gas a baja densidad. Es por esto que para burbujas pequeñas con altas densidades es necesario utilizar, para analizar el comportamiento del gas, una ecuación de estado como la de Van der Waals que considera que las partículas son esferas rígidas y uniformes con diámetros que ya no son - despreciables como en el caso de gas ideal y que además toma en cuenta fuerzas de atracción entre las partículas. Estas consideraciones se reflejan en una contribución a la presión en la pared de la burbuja, y un volumen real influido por el tamaño y número de las partículas.

La ecuación de Van der Waals está dada por :

$$\left(P + \left(\frac{n}{V} \right)^2 a \right) (V - nb) = n R T \quad (2.3.4)$$

donde a y b son constantes que dependen del tipo de gas que

se tiene, ya que están expresadas en términos de su presión, densidad y temperaturas críticas.

Para el gas Xenón tenemos que :

$$\delta_c = \text{densidad crítica} : 8.4175 \text{ kg/m}^3$$

$$T_c = \text{temperatura crítica} : 289.75 \text{ }^\circ\text{K}$$

$$P_c = \text{presión crítica} : 5.87 \times 10^6 \text{ Nt./m}^2$$

Las constantes a y b están dadas por ⁽⁵⁾ :

$$a = \frac{27 (RT_c)^2}{64 P_c} = .4116 \frac{\text{J.m}^3}{\text{mol}^2} \quad (2.3.5)(a)$$

$$b = \frac{RT_c}{8 P_c} = .511 \times 10^{-4} \frac{\text{m}^3}{\text{mol}} \quad (2.3.5)(b)$$

Ahora, como en el caso de la ecuación del gas ideal se calcula el radio de una burbuja dado un número n de moles de átomos de gas a una temperatura T. Para ésto sustituimos la condición de equilibrio dada por la ecuación (2.3.1) en la ecuación (2.3.4) para después ponerla en función del radio de la burbuja, quedando como :

$$R^8 - \frac{3nRT}{8\gamma} R^6 - \frac{3nb}{4\gamma} R^5 + \frac{9n^2 a}{32\gamma^2} R^2 - \frac{27n^3 ab}{128\gamma^3} = 0 \quad (2.3.6)$$

Para encontrar el radio de la burbuja dado el número de átomos n y la temperatura T, podemos encontrar el valor de R de la ecuación (2.3.6) con ayuda del método de Newton-Rapson ⁽⁶⁾.

D. Okrent ⁽⁷⁾ afirma que una desventaja de la ecuación de

Van der Waals es que para burbujas pequeñas, esta ecuación tiene una singularidad muy cerca de la presión de equilibrio en la burbuja. Esto quiere decir que si la densidad en las burbujas pequeñas sigue aumentando los valores de las presiones predichas por la ecuación serán mayores que el valor real. Esto podemos verlo si de la ecuación (2.3.4) despejamos la presión y vemos que el término $(v-nb)$, al aumentar la densidad, tiende a cero. Es decir :

$$P = \frac{n R T}{(v-nb)} - a \left(\frac{n}{v}\right)^2 \quad (2.3.7)$$

Buscando resolver el problema que representan las altas presiones en burbujas pequeñas, Harrison⁽⁸⁾ presenta, en forma tabulada, una ecuación de estado para el gas Xe en variables reducidas. Dicha ecuación fue construida utilizando como base resultados experimentales para Argón, ya que, como se ha demostrado que los gases Xenón y Argón obedecen de una forma aceptable el principio de estados correspondientes⁽⁹⁾, que nos dice que: "existe una relación de la forma $V_R = (f(P_R, T_R))$ que se cumple para todas las sustancias", de tal manera que los datos obtenidos por resultados experimentales para el Argón pueden ser usados para determinar los del gas Xenón.

Harrison comparó las predicciones hechas con su ecuación de estado con las correspondientes hechas con la ecuación de Van der Waals para algunos experimentos efectuados con Carburo de Uranio, encontrando mayor concordancia en el pri

mer caso. A pesar de ésto, la ecuación de Harrison presenta dos inconvenientes, que son : La derivación de esta ecuación requirió de extrapolación considerable de los datos experimentales y además resulta difícil de manejar por su forma tabular. Esta ecuación de estado en variables reducidas se reproduce en la tabla (2.3.1).

Es posible lograr una mayor exactitud en los resultados obtenidos en base al principio de estados correspondientes si éste considera más parámetros de los ya establecidos, como por ejemplo la pendiente de la curva de presión de vapor en el punto crítico.

De esta forma, la ecuación de estado de Schwarzblat⁽¹⁰⁾, basada en el principio de estados correspondientes en su forma multiparamétrica⁽¹¹⁾, es aplicada al análisis de burbujas pequeñas a altas presiones. Dicha ecuación de estado está dada como :

$$P_R = A (\delta_R) + B (\delta_R) \times T_R \quad (2.3.8)$$

con P_R la presión reducida, δ_R densidad reducida, T_R temperatura reducida.

$$\begin{aligned} A (\delta_R) &= \sum_{i=0}^7 A_i \delta_R^i \\ B (\delta_R) &= \sum_{i=0}^6 B_i \delta_R^i \end{aligned} \quad (2.3.9)$$

donde los coeficientes A_i y B_i están dados en la Tabla (2.3.2)

TABLA (2.3.1) (8)

Presiones del gas Xenón, en atmósferas, de la ecuación de estado tabulada. 1 atm = 1.013x10⁶ din/cm².

(Notación: 0.1234E04 = 0.1234x10⁴). T_c = 289.74 °K, δ_c = 186.3 amagat u. (1 amagat u. = 4.4927x10⁻⁵ mole/cm³)

$\frac{P}{P_c}$	0.2	0.4	0.6	0.8	1.0	1.2	1.4	1.6	1.8	2.0	2.2	2.4	2.6	2.8	3.0	3.2	3.4
1.9	0.7447E02	0.1453E03	0.2167E03	0.2961E03	0.3839E03	0.4995E03	0.6418E03	0.8113E03	0.1122E04	0.1512E04	0.1909E04	0.2444E04	0.3205E04	0.4372E04	0.6386E04	0.1070E05	0.2650E05
2.0	0.7984E02	0.1559E03	0.2338E03	0.3195E03	0.4194E03	0.5433E03	0.7049E03	0.9238E03	0.1228E04	0.1643E04	0.2075E04	0.2657E04	0.3448E04	0.4752E04	0.6941E04	0.1163E05	0.2880E05
2.2	0.8828E02	0.1759E03	0.2679E03	0.3702E03	0.4900E03	0.6395E03	0.8301E03	0.1095E04	0.1433E04	0.1902E04	0.2402E04	0.3076E04	0.4034E04	0.5502E04	0.8037E04	0.1347E05	0.3334E05
2.4	0.9732E02	0.1963E03	0.3017E03	0.4201E03	0.5600E03	0.7327E03	0.9537E03	0.1264E04	0.1633E04	0.2156E04	0.2722E04	0.3486E04	0.4571E04	0.6234E04	0.9107E04	0.1526E05	0.3773E05
2.6	0.1064E03	0.2164E03	0.3352E03	0.4700E03	0.6295E03	0.8261E03	0.1076E04	0.1401E04	0.1831E04	0.2403E04	0.3035E04	0.3886E04	0.5096E04	0.6950E04	0.1015E05	0.1701E05	0.4212E05
2.8	0.1155E03	0.2365E03	0.3688E03	0.5196E03	0.6986E03	0.9187E03	0.1197E04	0.1556E04	0.2036E04	0.2664E04	0.3361E04	0.4279E04	0.5611E04	0.7653E04	0.1118E05	0.1873E05	0.4638E05
3.0	0.1246E03	0.2567E03	0.4024E03	0.5694E03	0.7681E03	0.1012E04	0.1319E04	0.1713E04	0.2223E04	0.2894E04	0.3654E04	0.4640E04	0.6136E04	0.8370E04	0.1223E05	0.2049E05	0.5072E05
3.2	0.1337E03	0.2769E03	0.4360E03	0.6193E03	0.8376E03	0.1105E04	0.1442E04	0.1870E04	0.2434E04	0.3142E04	0.3967E04	0.5008E04	0.6662E04	0.9087E04	0.1327E05	0.2224E05	0.5507E05
3.4	0.1428E03	0.2972E03	0.4696E03	0.6692E03	0.9072E03	0.1199E04	0.1564E04	0.2027E04	0.2622E04	0.3399E04	0.4280E04	0.5481E04	0.7188E04	0.9804E04	0.1432E05	0.2400E05	0.5941E05
3.6	0.1519E03	0.3174E03	0.5033E03	0.7190E03	0.9767E03	0.1292E04	0.1686E04	0.2184E04	0.2822E04	0.3636E04	0.4593E04	0.5882E04	0.7713E04	0.1052E05	0.1537E05	0.2575E05	0.6376E05
3.8	0.1610E03	0.3376E03	0.5369E03	0.7693E03	0.1064E04	0.1386E04	0.1800E04	0.2342E04	0.3030E04	0.3886E04	0.4906E04	0.6283E04	0.8239E04	0.1124E05	0.1642E05	0.2715E05	0.6811E05
4.0	0.1701E03	0.3578E03	0.5705E03	0.8187E03	0.1116E04	0.1479E04	0.1931E04	0.2539E04	0.3279E04	0.4133E04	0.5220E04	0.6684E04	0.8765E04	0.1196E05	0.1746E05	0.2926E05	0.7245E05
4.2	0.1792E03	0.3780E03	0.6041E03	0.8686E03	0.1168E04	0.1572E04	0.2053E04	0.2656E04	0.3417E04	0.4338E04	0.5533E04	0.7085E04	0.9291E04	0.1267E05	0.1851E05	0.3102E05	0.7680E05
4.4	0.1883E03	0.3982E03	0.6378E03	0.9185E03	0.1225E04	0.1666E04	0.2175E04	0.2813E04	0.3616E04	0.4629E04	0.5846E04	0.7486E04	0.9816E04	0.1339E05	0.1956E05	0.3277E05	0.8114E05
4.6	0.1974E03	0.4184E03	0.6714E03	0.9683E03	0.1282E04	0.1759E04	0.2298E04	0.2970E04	0.3815E04	0.4877E04	0.6159E04	0.7887E04	0.1034E05	0.1411E05	0.2061E05	0.3453E05	0.8549E05
4.8	0.2065E03	0.4386E03	0.7050E03	0.1018E04	0.1394E04	0.1853E04	0.2420E04	0.3127E04	0.4014E04	0.5125E04	0.6472E04	0.8268E04	0.1087E05	0.1482E05	0.2165E05	0.3620E05	0.8983E05
5.0	0.2156E03	0.4588E03	0.7387E03	0.1068E04	0.1463E04	0.1946E04	0.2542E04	0.3284E04	0.4212E04	0.5373E04	0.6785E04	0.8688E04	0.1139E05	0.1554E05	0.2270E05	0.3804E05	0.9418E05
5.2	0.2247E03	0.4790E03	0.7723E03	0.1118E04	0.1533E04	0.2039E04	0.2665E04	0.3441E04	0.4411E04	0.5624E04	0.7099E04	0.9098E04	0.1192E05	0.1626E05	0.2375E05	0.3973E05	0.9853E05
5.4	0.2338E03	0.4992E03	0.8059E03	0.1168E04	0.1602E04	0.2133E04	0.2787E04	0.3599E04	0.4618E04	0.5869E04	0.7411E04	0.9490E04	0.1244E05	0.1697E05	0.2480E05	0.4155E05	0.1029E06
5.6	0.2429E03	0.5194E03	0.8395E03	0.1218E04	0.1672E04	0.2228E04	0.2909E04	0.3755E04	0.4808E04	0.6117E04	0.7724E04	0.9891E04	0.1297E05	0.1769E05	0.2584E05	0.4330E05	0.1072E06
5.8	0.2520E03	0.5396E03	0.8731E03	0.1267E04	0.1741E04	0.2313E04	0.3031E04	0.3912E04	0.5007E04	0.6365E04	0.8037E04	0.1029E05	0.1350E05	0.1844E05	0.2688E05	0.4506E05	0.1116E06
6.0	0.2611E03	0.5598E03	0.9068E03	0.1317E04	0.1811E04	0.2403E04	0.3154E04	0.4069E04	0.5206E04	0.6613E04	0.8350E04	0.1069E05	0.1402E05	0.1913E05	0.2794E05	0.4681E05	0.1159E06
6.2	0.2702E03	0.5801E03	0.9404E03	0.1367E04	0.1880E04	0.2506E04	0.3276E04	0.4227E04	0.5405E04	0.6860E04	0.8663E04	0.1109E05	0.1455E05	0.1984E05	0.2899E05	0.4857E05	0.1203E06
6.4	0.2793E03	0.6003E03	0.9740E03	0.1417E04	0.1950E04	0.2608E04	0.3398E04	0.4384E04	0.5603E04	0.7108E04	0.8976E04	0.1149E05	0.1507E05	0.2056E05	0.3003E05	0.5032E05	0.1246E06
6.6	0.2884E03	0.6205E03	0.1008E04	0.1467E04	0.2019E04	0.2693E04	0.3521E04	0.4544E04	0.5802E04	0.7356E04	0.9299E04	0.1190E05	0.1560E05	0.2128E05	0.3108E05	0.5208E05	0.1289E06
6.8	0.2975E03	0.6407E03	0.1041E04	0.1517E04	0.2089E04	0.2786E04	0.3643E04	0.4667E04	0.6001E04	0.7604E04	0.9602E04	0.1230E05	0.1612E05	0.2199E05	0.3213E05	0.5383E05	0.1333E06
7.0	0.3066E03	0.6609E03	0.1075E04	0.1567E04	0.2158E04	0.2880E04	0.3765E04	0.4855E04	0.6200E04	0.7852E04	0.9915E04	0.1270E05	0.1665E05	0.2271E05	0.3318E05	0.5555E05	0.1376E06

TABLA (2.3.2)⁽¹⁰⁾

Valores de los coeficientes A_i , B_i en la ecuación de Schwarzblat.

i	A_i	B_i
0	1.4234	- 0.536774
1	- 13.8112	8.25919
2	38.685	- 11.1446
3	- 64.7579	17.0612
4	46.8155	- 9.65745
5	- 16.2954	2.34991
6	2.78469	- 0.150316
7	- 0.188624	0.0

Como en el caso de la ecuación de gas ideal y de Van der Waals, dado un cierto número de átomos de gas a una temperatura dada vamos a calcular el radio de la burbuja con ayuda del método de Newton-Rapson, en la ecuación (2.3.10) que se obtiene en base a las ecuaciones (2.3.1) y (2.3.8) con A_i , B_i coeficientes en la ecuación ya dados, T_R y δ_R temperatura y densidad reducidas, P_C y δ_C presión y densidad críticas, Tenemos entonces que :

$$\begin{aligned}
 & A_0 + B_0 T_R + (A_1 + B_1 T_R) \delta_R + (A_2 + B_2 T_R) \delta_R^2 + (A_3 + B_3 T_R) \delta_R^3 + \\
 & (A_4 + B_4 T_R) \delta_R^4 + (A_5 + B_5 T_R) \delta_R^5 + (A_6 + B_6 T_R) \delta_R^6 + \\
 & A_7 \delta_R^7 - \left(\frac{3m}{4\pi\delta_C} \right)^{-1/3} \frac{2\gamma\delta_R^{1/3}}{P_C} = 0 \qquad (2.3.10)
 \end{aligned}$$

Esta ecuación de estado tiene la ventaja por su forma de ser

fácilmente implementada en un análisis por computadora dando los valores más confiables del radio. En figura (2.3.1)⁽¹⁰⁾ se pueden apreciar los distintos comportamientos de las ecuaciones de estado aquí tratadas para distintos valores de la densidad y presión reducidas, a una temperatura reducida igual a 5. En esta figura se puede distinguir la diferencia entre la ecuación de Harrison y de Schwarzblat para valores altos de la densidad. Esta diferencia se atribuye a los valores extrapolados por la ecuación de Harrison. También sobresale la forma en que la ecuación de Van der Waals, para valores grandes de la densidad predice valores desmedidos de la presión. Por último, en la tabla (2.3.3) se dan los radios de burbujas con diferente número de átomos de gas contenido, a distintas temperaturas dentro del combustible UO_2 con $\gamma = 1 \text{ Joule/m}^2$ en base a las ecuaciones (2.3.3), (2.3.6) y (2.3.10).

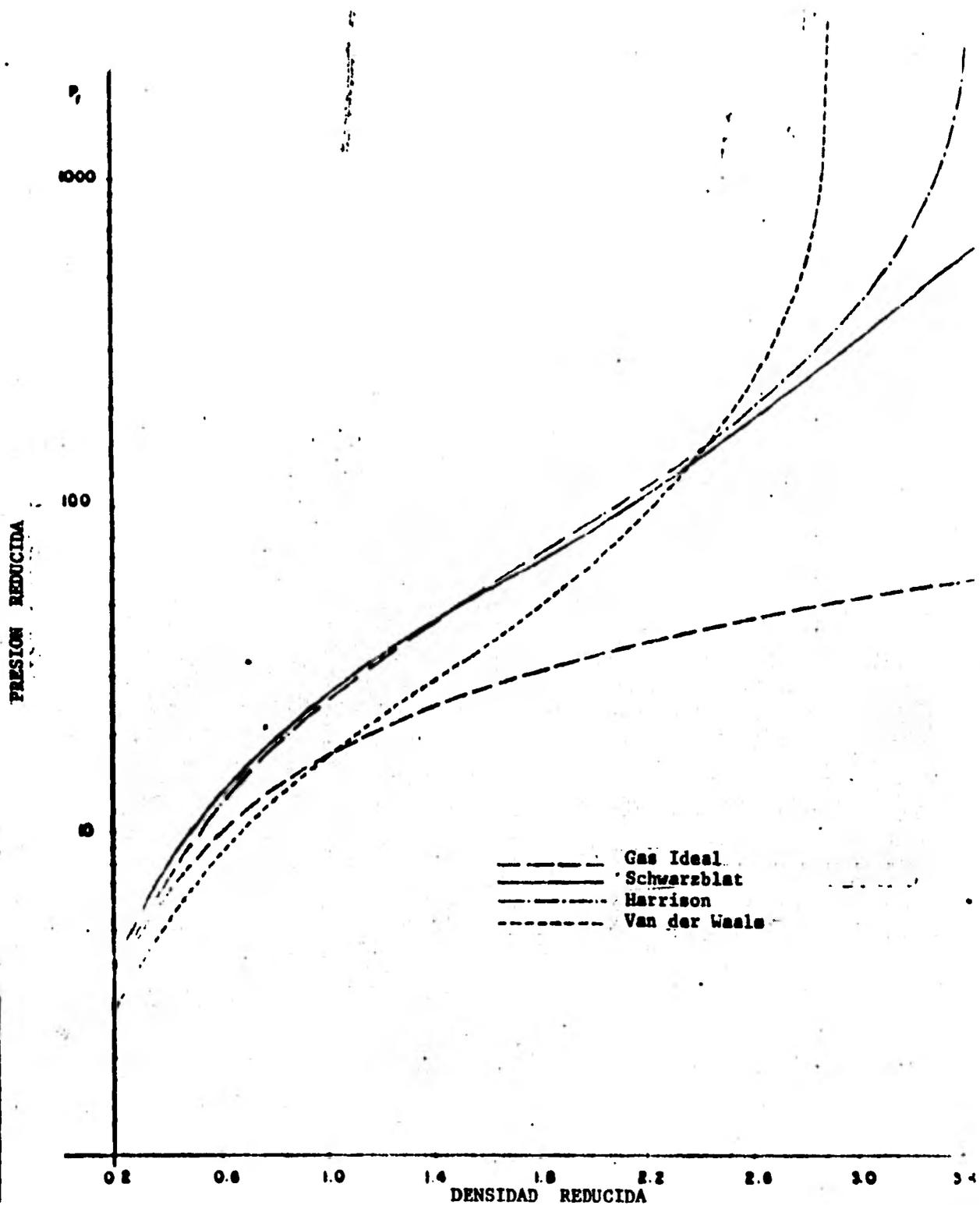


Fig. (2.3.1) Valores de la presión reducida para diferentes densidades reducidas, a una temperatura reducida igual a 5.

TABLA (2.3.3)

Valores de los radios de burbujas, en cm., para diferentes temperaturas y números de átomos de gas Xe contenidos, obtenidos con las ecuaciones de estado de Schwarzblat, Van der Waals y Gas Ideal.

Temperatura °K	No. de Atomos	Schwarzblat	Van der Waals	Gas Ideal
1073	10	5.0308×10^{-8}	5.9771×10^{-8}	1.3300×10^{-8}
3073	10	5.4325×10^{-8}	6.1638×10^{-8}	2.2507×10^{-8}
1073	100	1.1461×10^{-7}	1.3126×10^{-7}	4.2057×10^{-8}
3073	100	1.2708×10^{-7}	1.3990×10^{-7}	7.1174×10^{-8}
1073	1000	2.6420×10^{-7}	2.9434×10^{-7}	1.3300×10^{-7}
3073	1000	3.148×10^{-7}	3.3382×10^{-7}	2.2507×10^{-7}
1073	10000	6.3000×10^{-7}	6.8715×10^{-7}	4.2057×10^{-7}
3073	10000	8.5810×10^{-7}	8.6138×10^{-7}	7.1174×10^{-7}

Se puede observar en la tabla (2.3.3) que la diferencia entre los valores de los radios de las burbujas para las diferentes ecuaciones de estado, es más grande a medida que las burbujas son más pequeñas y la densidad y presión del gas aumentan. Finalmente podemos decir que este hecho es importante, ya que el hinchamiento y el escape de gas del material combustible dependen directamente del tamaño de las burbujas, como se verá a continuación.

CAPITULO III

- 3.1 MECANISMOS DE DIFUSION**
- 3.2 COALESCENCIA DE BURBUJAS**
- 3.3 RESOLUCION DE BURBUJAS**
- 3.4 INTERACCION DE BURBUJAS
CON DISLOCACIONES Y FRON
TERAS DE GRANO**

3.1 MECANISMOS DE DIFUSION

Las burbujas de gas que se han formado en el combustible podrán moverse dentro del mismo en base a tres mecanismos de difusión, considerados como los más importantes, que son:

- 1) Difusión Superficial.
- 2) Difusión Volumétrica.
- 3) Transporte de Vapor.

El mecanismo de difusión superficial se presenta cuando los átomos de la red que están en la superficie interna de la burbuja, se desplazan hacia vacancias vecinas sobre esta misma superficie. Estos desplazamientos pueden ser al azar, o influidos por un gradiente de temperatura en el material, dándoles una dirección preferencial. Como se considera que por cada átomo que se mueve la burbuja tiene un desplazamiento, ésta podrá moverse al azar en el primer caso y en una dirección preferencial en el segundo.

La difusión volumétrica se observa bajo condiciones denotadas como equilibrio mecánico, que implica que el número de átomos de gas contenidos por la burbuja permanece constante y además que el número de vacancias que entran y salen de la burbuja por unidad de tiempo, es el mismo. Siendo así, consideraremos que por cada vacancia que entra o sale de la burbuja, ésta tendrá un desplazamiento al azar ya que la va

cancia podrá llegar a abandonar la superficie de la burbuja en cualquier punto de ésta.

Por otra parte, el mecanismo de transporte de vapor se presenta cuando los átomos de una cierta región de la superficie de la burbuja se desplazan normalmente a ésta hacia el interior de la burbuja.

Independientemente del mecanismo de difusión involucrado, la movilidad de cualquier especie en un medio dado depende de su coeficiente de difusión. Como sabemos, por la primera ley de Fick, el coeficiente de difusión D está relacionado con cantidades medibles como el vector de densidad de corriente J de la especie y el gradiente de la concentración C de dicha especie por medio de la ecuación :

$$J = - D \nabla C \quad (3.1.1)$$

A continuación determinaremos el coeficiente de difusión de las burbujas, primero en forma general, para posteriormente dar su valor para cada uno de los mecanismos ya especificados.

Se supone que una burbuja que se encuentra en el origen en un instante dado, comienza a moverse dando "brincos" de una longitud $|\bar{\lambda}|$ en cualquier dirección. Cabe aclarar que estos brincos variarán en longitud para las diversas burbujas, ya que no todas son del mismo tamaño ni contienen el mismo

número de átomos de gas. Esto nos lleva a definir a $P_t(\bar{r})d^3r$ como la probabilidad de encontrar una burbuja en un elemento de volumen d^3r , en el punto \bar{r} a un tiempo t de terminado.

La cantidad que mejor describe el desplazamiento promedio de la burbuja es el desplazamiento cuadrático medio \bar{r}^2 , definido como⁽¹²⁾ :

$$\bar{r}^2 = \int_V r^2 P_t(\bar{r})d^3r = \int_0^\infty 4\pi r^4 P_t(\bar{r}) dr \quad (3.1.2)$$

Para determinar este parámetro es necesario conocer a $P_t(\bar{r})$. Siendo así, necesitamos encontrar la concentración de burbujas en un punto \bar{r} , en un medio que supondremos homogéneo, isotrópico e infinito, a un tiempo t . Esto es posible en base a la ecuación de difusión (3.1.3) con su coeficiente de difusión D independiente de la posición y el tiempo y con condiciones inicial y de frontera (3.1.4) y (3.1.5) respectivamente.

$$\nabla^2 C = \frac{1}{D} \frac{\partial C}{\partial t} \quad (3.1.3)$$

$$C(\bar{r}, 0) = 0 \quad \bar{r} \neq 0 \quad (3.1.4)$$

$$C(\infty, t) = 0 \quad t > 0$$

$$\int_0^\infty 4\pi R^2 C_n(n, t)d^3r = N \quad (3.1.5)$$

suponiendo una fuente puntual de burbujas en el origen que en $t = 0$ emite un número N_0 de burbujas, o sea la condición de normalización.

La solución a la ecuación de difusión (3.1.3) con las condiciones (3.1.4) y (3.1.5) está dada por⁽¹³⁾

$$C(\bar{r}, t) = \frac{N_0}{(4\pi Dt)^{3/2}} e^{-r^2/4Dt} \quad (3.1.6)$$

donde N_0 es el número total de burbujas que fueron introducidas al material.

Si conocemos, por medio de la ecuación (3.1.6), la concentración de burbujas en el punto \bar{r} al tiempo t , tenemos que si queremos encontrar una burbuja en un elemento de volumen d^3r en una posición \bar{r} a partir del origen, la probabilidad de lograrlo estará dada por la razón entre la concentración de burbujas en \bar{r} y el número total N_0 de las que están presentes en el material. Por lo tanto :

$$P_t(\bar{r}) = \frac{C(\bar{r}, t)}{N_0} = \frac{e^{-r^2/4Dt}}{(4\pi Dt)^{3/2}} \quad (3.1.7)$$

Es así que substituyendo la ecuación (3.1.7) en la ecuación (3.1.2), nos queda que :

$$\bar{r}^2 = \frac{4\pi}{(4\pi Dt)^{3/2}} \int_0^\infty r^4 e^{-r^2/4Dt} dr \quad (3.1.8)$$

Integrando por partes la ecuación (3.1.8) obtenemos que :

$$\bar{r}^2 = \frac{48 \sqrt{Dt}^2}{(4\sqrt{Dt})^{3/2}} \int_0^{\infty} e^{-r^2/4Dt} dr \quad (3.1.9)$$

Dado que la función de error está definida como :

$$\text{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-\eta^2} d\eta = \begin{cases} 0 & \text{si } z=0 \\ 1 & \text{si } z=\infty \end{cases} \quad (3.1.10)$$

haciendo, en la ecuación (3.1.9) el siguiente cambio de variable:

$$\eta^2 = \frac{r^2}{4Dt} \quad \text{donde} \quad d\eta = (4Dt)^{-1/2} dr \quad (3.1.11)$$

y además se multiplica por el factor :

$$\frac{\sqrt{\pi}^{1/2} 2 (2Dt)^{1/2}}{\sqrt{\pi}^{1/2} 2 (2Dt)^{1/2}}$$

para finalmente, usando la definición de erf(z) ecuación (3.1.10), obtener que :

$$\bar{r}^2 = \frac{24\sqrt{\pi} (Dt)^2 2 (Dt)^{1/2} \sqrt{\pi}^{1/2}}{(4\sqrt{Dt})^{3/2}} = 6 Dt$$

Por lo tanto :

$$\bar{r}^2 = 6 Dt \quad (3.1.12)$$

Otra forma de determinar \bar{r}^2 es por medio de la teoría de camino al azar.

Para esto, partimos de que una burbuja que se encuentra en el origen en $t = 0$ empieza a moverse dando brincos con una

frecuencia Γ durante un intervalo de tiempo t , de tal manera que el número n de brincos dados será :

$$n = \Gamma t \quad (3.1.13)$$

Cada uno de estos brincos estará representado por un vector de posición λ_i , de magnitud constante λ . Si suponemos que estos brincos son al azar, la posición de la burbuja después de n brincos será la suma de los vectores λ_i con $i = 1, 2, \dots, n$, es decir :

$$\bar{r} = \bar{\lambda}_1 + \bar{\lambda}_2 + \dots + \bar{\lambda}_n \quad (3.1.14)$$

Por lo tanto, el cuadrado del desplazamiento después de n brincos será :

$$\begin{aligned} r^2 = \bar{r} \cdot \bar{r} = & (\bar{\lambda}_1 \cdot \bar{\lambda}_1) + (\bar{\lambda}_1 \cdot \bar{\lambda}_2) + \dots + (\bar{\lambda}_1 \cdot \bar{\lambda}_n) + \\ & (\bar{\lambda}_2 \cdot \bar{\lambda}_1) + \dots + (\bar{\lambda}_2 \cdot \bar{\lambda}_n) + \dots + (\bar{\lambda}_n \cdot \bar{\lambda}_1) + (\bar{\lambda}_n \cdot \bar{\lambda}_2) \\ & + \dots + (\bar{\lambda}_n \cdot \bar{\lambda}_n) \end{aligned} \quad (3.1.15)$$

que es posible agrupar como :

$$r^2 = \sum_{i=1}^n \bar{\lambda}_i \cdot \bar{\lambda}_i + 2 \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n \bar{\lambda}_i \cdot \bar{\lambda}_j \quad (3.1.16)$$

En el segundo término de la derecha de la ecuación (3.1.16), tenemos que el producto $\bar{\lambda}_i \cdot \bar{\lambda}_j = \lambda^2 \cos \theta_{ij}$ nos proporcionará todos los productos de los vectores $\bar{\lambda}_i \cdot \bar{\lambda}_j$, donde $i \neq j$

y θ_{ij} es ángulo entre los vectores $\bar{\lambda}_i$ $\bar{\lambda}_j$. Por lo tanto :

$$r^2 = \sum_{i=1}^n \lambda^2 + 2 \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n \lambda^2 \cos \theta_{ij} \quad (3.1.17)$$

Como $\lambda^2 = \text{cte.}$ la ecuación (3.1.17) queda como :

$$r^2 = n \lambda^2 \left\{ 1 + \frac{2}{n} \sum_{i=1}^n \sum_{j=i+1}^n \cos \theta_{ij} \right\} \quad (3.1.18)$$

La ecuación (3.1.18) nos da el desplazamiento al cuadrado - de una sola burbuja, de tal manera que el desplazamiento cuadrático medio se obtiene promediando r^2 sobre un número grande de eventos con características similares al primero. Dado que $\cos \theta_{ij}$ puede tomar valores entre -1 y 1, por el proceso estocástico que se desarrolla el valor promedio de $\cos \theta_{ij}$ es cero.

Nos queda entonces que :

$$\bar{r}^2 = n \lambda^2 \quad (3.1.9)$$

Substituyendo la ecuación (3.1.13) en la ecuación (3.1.19) tenemos que :

$$\bar{r}^2 = \lambda^2 \Gamma t \quad (3.1.20)$$

Como se mencionó antes, λ varía con el tamaño y el número de átomos de gas de las diversas clases de burbujas. Cabe aclarar que también Γ y D serán diferentes para distintas clases de burbujas.

Igualando las ecuaciones (3.1.20) y (3.1.12) tenemos que, en el caso de una clase de burbujas con sus r_B , λ_B , y D_B características :

$$\lambda_B^2 r_B^2 t = 6 D_B t \quad (3.1.21)$$

de donde, despejando D_B nos queda que :

$$D_B = \frac{\lambda_B^2 r_B^2}{6} \quad (3.1.22)$$

La ecuación (3.1.22) nos da el coeficiente de difusión de cualquier burbuja en un medio homogéneo, isotrópico e infinito, independientemente del mecanismo que siga para moverse. Lo que si podrá variar para cada mecanismo son los parámetros, λ_B y r_B .

En el caso de difusión superficial, para describir el procedimiento de cálculo de los parámetros λ_B^2 y r_B , empezaremos por considerar el caso de una burbuja cúbica con objeto de simplificar el tratamiento, haciéndose al final las consideraciones correspondientes al caso de burbujas esféricas. En la figura (3.1.1) se ilustra el desplazamiento Δx de una burbuja cúbica, indicando con línea continua la posición de la burbuja en el instante de observación y la línea punteada la posición anterior a ésta.

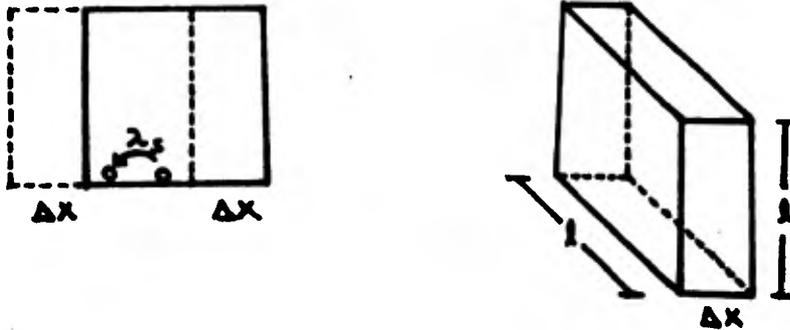


Fig. (3.1.1) Esquema del mecanismo de difusión superficial para una burbuja cúbica.

La burbuja, como se puede apreciar, se ha desplazado una distancia Δx y para lograrlo todas las moléculas que se encontraban en el volumen $\ell^2 \Delta x$, que son $\ell^2 \Delta x / \Omega$ donde Ω es el volumen ocupado por cada átomo en la red, tuvieron que hacer ℓ / λ_s brinco donde λ_s es la distancia que existe entre dos átomos de la red. Siendo así, el número total de brinco de cada uno de ellos o sea : $(\ell / \lambda_s) (\ell^2 \Delta x / \Omega) = (\ell^3 \Delta x / \Omega \lambda_s)$.

Entonces, la distancia λ_B que se mueve la burbuja por cada átomo que brinca está dada por $\lambda_B = (\Delta x) / (\ell^3 \Delta x / \Omega \lambda_s)$, o sea :

$$\lambda_B = \frac{\lambda_s \Omega}{\ell^3} \quad (3.1.23)$$

Ahora, es posible hacer las aproximaciones para una burbuja esférica, si se substituye :

$$\ell^3 = \frac{4}{3} \pi R^3 \quad \text{y} \quad \Omega = a_0^3 \quad (3.1.24)$$

Donde R es el radio de la burbuja y a_0 es la distancia entre átomos de la red. Substituyendo estos valores en la ecuación (3.1.23) nos queda que el brinco de una burbuja está dado en función de R como :

$$\lambda_B = \frac{3a_0^3 \lambda_s}{4\pi R^3} \quad (3.1.25)$$

En lo que respecta a Γ_B , vemos que debe depender del número de átomos en la superficie que brincaron y la frecuencia Γ_s con que lo hicieron. Si suponemos que el área ocupada por cada uno de estos átomos es a_0^2 , entonces existirán $4\pi R^2/a_0^2$ átomos contenidos en la superficie de la burbuja. Es así que como brincaron Γ_s veces, la frecuencia Γ_B de la burbuja será :

$$\Gamma_B = \left(\frac{4\pi R^2}{a_0^2} \right) \Gamma_s \quad (3.1.26)$$

Para encontrar el coeficiente de difusión D_s de los átomos de la red sobre la superficie de la burbuja, se sigue el mismo método que el usado para encontrar la ecuación (3.1.22) pero no en tres sino en dos dimensiones resultando que $D_s = \lambda_s^2 \Gamma_s / 4$. Entonces, tomando en cuenta el valor de D_s substituimos las ecuaciones (3.1.25) y (3.1.26) en la ecuación (3.1.22) para obtener el coeficiente de difusión de la burbuja, en el caso de difusión superficial, que está dado por :

$$D_{BS} = \frac{3 a_o^4 D_S}{2 \pi R^4} \quad (3.1.27) (a)$$

El coeficiente D_S está expresado como $D_{o_s} e^{-E_d/KT}$ y se obtiene experimentalmente⁽¹⁴⁾, siendo E_d la energía necesaria para que un átomo de la red se desplace en la superficie de la burbuja, K la constante de Boltzman y T la temperatura.

Los métodos para obtener los coeficientes de difusión en los casos de difusión volumétrica⁽¹⁵⁾ y de transporte de vapor⁽¹⁶⁾ están más allá de los objetivos de esta tesis, por lo que solamente se darán sus resultados, que se muestran en las ecuaciones (3.1.27) (b) y (3.1.27)(c) respectivamente.

$$D_{BV} = \frac{a_o^3 D_v}{\pi R^3} \quad (3.1.27) (b)$$

$$D_{BT} = \frac{f(h, T) e^{-h/KT}}{R^2} \quad (3.1.27) (c)$$

donde D_v es el coeficiente de difusión volumétrica, h la energía necesaria para que un átomo se desplace en la superficie de la burbuja y f es una función adecuada de h y T .

Comparando las ecuaciones (3.1.27) se ve que los coeficientes de difusión dependen inversamente del radio de burbuja R elevado a distintas potencias, por lo que se puede esperar que mediante experimentos se determine el mecanismo de difusión predominantemente para diversas clases de burbujas. Cuando una burbuja se ve influida por un gradiente de tempe

ratura su movimiento en el material es en la dirección del gradiente, debido a que los átomos o vacancias que se desplazan en su superficie, lo hacen de su zona de mayor temperatura a la de menor temperatura. En base a esto es posible asociar al movimiento de la burbuja una fuerza en función del gradiente de temperatura que al actuar sobre ella, la hace adquirir una velocidad que varía según su tamaño y el tipo de mecanismo de difusión que opera en ese momento. Esta situación es importante ya que representa una forma objetiva de poder determinar experimentalmente cuál es el mecanismo de difusión que observan las burbujas bajo ciertas condiciones, midiendo directamente sus radios y velocidades durante el experimento. Cabe agregar que otra razón por la que es importante este efecto es que cuando varias burbujas se ven afectadas por un gradiente de temperatura, al moverse todas en una misma dirección hacia algún punto en la frontera de grano es cuando el escape de gas es mayor.

A continuación se verá la forma en que se calcula la velocidad de las burbujas para diferentes mecanismos de difusión y finalmente, se presentan algunos trabajos que buscan determinar cuál es el mecanismo de difusión preferente de las burbujas.

En un trabajo presentado por Nichols⁽¹⁷⁾ se establece que si se conoce el coeficiente de difusión, la temperatura y la fuerza que actúa sobre una burbuja se puede calcular su velocidad en base a analizar su movilidad. La relación que

encuentra entre estos parámetros está dada por :

$$\bar{V}_B = \frac{D_B}{KT} \bar{F}_B \quad (3.1.28)$$

donde :

\bar{V}_B : es la velocidad de la burbuja

D_B : es el coeficiente de difusión de la burbuja

\bar{F}_B : fuerza que actúa sobre la burbuja

T : la temperatura

K : la constante de Boltzman

Vamos, a continuación, a determinar las velocidades de burbujas que se mueven por difusión superficial y volumétrica influidas por un gradiente de temperatura. En lo que respecta a los coeficientes de difusión éstos estarán dados - por las ecuaciones (3.1.27) (a) y (3.1.27) (b). La fuerza \bar{F}_B por su parte está relacionada con la fuerza \bar{F} que actúa sobre cada uno de los átomos o vacancias en la superficie de la burbuja. Si recurrimos a la figura (3.1.1) vemos que para que la burbuja se moviera una distancia Δx - fue necesario que $\ell^2 \Delta x / \Omega$ átomos se movieran una distancia ℓ . Ahora, si sobre cada uno de estos átomos actúa una fuerza \bar{F} en la dirección del desplazamiento el trabajo necesario para moverla es $(\ell^2 \Delta x / \Omega) \ell \bar{F} = \ell^3 \Delta x f / \Omega$. Como la burbuja,

a su vez se mueve una distancia $-\Delta x$, el trabajo necesario para hacerlo es $-\bar{F}_B \Delta x$. Dado que estos trabajos son iguales, haciendo $\lambda^3 = \frac{4}{3} \pi R^3$ y $\Omega = a_0^3$ tenemos que :

$$\bar{F}_B = - \left(\frac{4 \pi R^3}{3 a_0^3} \right) \bar{F} \quad (3.1.29)$$

donde \bar{F} está dada como :

$$\bar{F}_S = - \frac{E_S}{T} \frac{3}{2} \nabla T \quad \text{para difusión superficial}$$

$$\bar{F}_V = - \frac{E_V}{T} \frac{3}{2} \nabla T \quad \text{para difusión volumétrica}$$

con :

\bar{F}_S : fuerza que actúa sobre un átomo de la red que se des^uplaza sobre la superficie de la burbuja, influido por un gradiente de temperatura.

\bar{F}_V : fuerza que actúa sobre una vacancia que se des^uplaza sobre la superficie de la burbuja, influida por un gradiente de temperatura.

E_S : energía necesaria para desprender un átomo de la red, en la superficie de la burbuja y que se desplace una distancia λ_S .

E_V : energía necesaria para que una vacancia se desplace una distancia λ_V , en la superficie de la burbuja.

Substituyendo los valores de los coeficientes de difusión -

(3.1.27)(a) y (3.1.27)(b), y los de la fuerza de la burbuja, ecuación (3.1.29), para cada mecanismo de difusión en la ecuación (3.1.28), encontramos que la velocidad de las burbujas estarán dadas, para difusión superficial como :

$$\bar{V}_{BS} = \frac{3Ds E_s a_e \sqrt{T}}{K T^2 R} \quad (3.1.30)$$

con una dependencia inversamente proporcional al radio de la burbuja y :

$$\bar{V}_{BV} = \frac{Dv E_v \sqrt{T}}{K T^2} \quad (3.1.31)$$

para difusión volumétrica, independiente del radio de la burbuja.

A continuación, en base a las ecuaciones (3.1.30) y (3.1.31), se presenta la tabla (3.1.1) con las velocidades de burbujas calculadas para un gradiente de temperatura de 1000 °K/cm y radios obtenidos por las ecuaciones de gas ideal y de Schwarzblat, tabla (2.3.3).

En la tabla (3.1.1) se puede ver que las diferencias más grandes entre los valores predichos para los coeficientes de difusión y velocidades, obtenidos con radios de las ecuaciones de estado de Gas Ideal y Schwarzblat, es más grande a medida que las burbujas son más pequeñas y la densidad y presión del gas que contienen aumenta. Esto refleja la importancia que tiene resolver el problema de la ecuación de

TABLA (3.1.1)

Valores de velocidades de burbujas por difusión superficial y difusión volumétrica para diferentes temperaturas, número de átomos de gas contenidos, influidas por un gradiente de temperatura de - - 1000°K/cm, con radios obtenidos por las ecuaciones de estado de Gas Ideal y Schwarzblat.

Notación : .8581E-6 = .8581x10⁻⁶

1) Gas Ideal

2) Schwarzblat

Temperatura °K	No. de Atomos	Radio cm	°K/cm	D _{Bs} cm ² /s	V _{Bs} cm/s	D _{Bv} cm ² /s	V _{Bv} cm/s
1) 1073	10	.133E-7	1000	.5974E-15	.106E-5	.1538E-13	.1173E-7
2) 1073	10	.503E-7	1000	.2918E-17	.196E-7	.4067E-14	.1173E-7
1) 3073	10	.225E-7	1000	.134E-1	.2235E-6	.2039	.1461E-8
2) 3073	10	.5432E-7	1000	.3948E-3	.159E-7	.8448E-1	.1461E-8
1) 1073	100	.4205E-7	1000	.5975E-17	.3355E-7	.4865E-14	.1173E-7
2) 1073	100	.1146E-6	1000	.1083E-18	.1657E-8	.1785E-14	.1173E-7
1) 3073	100	.7117E-7	1000	.1340E-3	.707E-8	.6448E-1	.1461E-8
2) 3073	100	.127E-6	1000	.1318E-4	.1242E-8	.3611E-1	.1461E-8
1) 1073	1000	.133E-6	1000	.5974E-19	.106E-8	.1538E-14	.1173E-7
2) 1073	1000	.2642E-6	1000	.3887E-20	.1353E-9	.7745E-15	.1173E-7
1) 3073	1000	.225E-6	1000	.134E-5	.2235E-9	.2039E-1	.1461E-8
2) 3073	1000	.3198E-6	1000	.3284E-6	.7788E-10	.1434E-1	.1461E-8
1) 1073	10000	.4205E-6	1000	.5975E-21	.3355E-10	.4865-15	.1173E-7
2) 1073	10000	.630E-6	1000	.1186E-21	.9981E-11	.3248E-15	.1173E-7
1) 3073	10000	.7117E-6	1000	.134E-7	.707E-11	.6448E-2	.1461E-8
2) 3073	10000	.8581E-6	1000	.6343E-8	.4034E-11	.5348E-2	.1461E-8

estado que observa el gas dentro de una burbuja dada su influencia en el cálculo de su tamaño y velocidad relacionados a su vez con el hinchamiento y el escape de gas del material combustible.

A continuación se hará un breve análisis de algunos trabajos orientados hacia la investigación de los mecanismos de difusión de las burbujas en el material combustible.

El trabajo presentado por Gulden⁽¹⁶⁾ está orientado hacia un análisis experimental de los mecanismos de difusión de las burbujas considerados más importantes, para determinar cuál de ellos predomina bajo ciertas condiciones. Los mecanismos considerados son :

$$\text{Difusión Superficial : } D_{BS} = \frac{3a_0^4 D_s}{2\pi\sqrt{2} R^2} \quad (3.1.32) (a)$$

$$\text{Difusión Volumétrica } D_{BV} = \frac{a_0^3 D_v}{\pi R^3} \quad (3.1.32) (b)$$

Difusión por Transporte de Vapor:

$$D_{BT} = \frac{f(h,T)e^{-h/KT}}{R^2} \quad (3.1.32) (c)$$

donde : a_0 es la distancia entre los átomos de la red cristalina del combustible, h el calor latente de vaporización y K la constante de Boltzman.

En este tratamiento, Gulden considera que las burbujas no se ven influidas por un gradiente de temperatura de tal manera que la raíz cuadrada del desplazamiento cuadrático medio está dada como :

$$(\bar{r}^2)^{1/2} = (6 D_{Bt})^{1/2} \quad (3.1.33)$$

Ahora, si consideramos que el movimiento se lleva a cabo a una temperatura dada, calculamos el logaritmo de la ecuación (3.1.33) quedando como :

$$\log (\bar{r}^2)^{1/2} = \log \text{cte.} + m \log \frac{1}{R} \quad (3.1.34)$$

donde : $m = 2$ para difusión superficial

$m = 3/2$ para difusión volumétrica

$m = 1$ para transporte de vapor

Como la pendiente en la recta de la ecuación (3.1.34) toma un valor determinado para cada tipo de mecanismo de difusión en particular, el propósito ahora es determinar la pendiente de esta recta experimentalmente, con la ayuda de un microscopio electrónico determinando el tamaño de una serie de burbujas y sus desplazamientos producidos a distintas temperaturas de calentamiento en una muestra de UO_2 que, originalmente, formaba parte del material combustible de un reactor.

Los resultados obtenidos para tres temperaturas y tiempos de calentamiento distintos, se muestran en la figura (3.1.2)

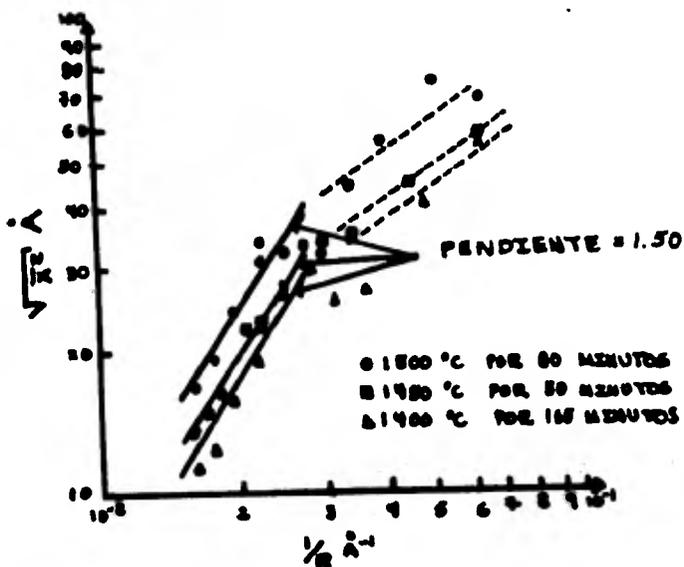


Fig. (3.1.2)⁽¹⁶⁾ Gráfica log-log de la raíz cuadrada del desplazamiento cuadrático medio contra el inverso del radio de burbujas para diferentes temperaturas y tiempos de calentamiento.

A partir de la Fig. (3.1.2) se concluye que para burbujas con radios mayores que 37 \AA , el mecanismo de difusión predominante es el volumétrico ya que la pendiente de las rectas es de 1.5. Para burbujas con radios menores que 37 \AA , la pendiente es menor que 1.5, por lo que se puede esperar que el mecanismo de difusión sea, en este caso transporte de vapor, no obstante que para este último tipo de burbujas, con $R < 37 \text{ \AA}$, se presentan errores por contraste al medir los radios de las burbujas.

Buescher y Meyer⁽¹⁸⁾ presentan una tabla con diferentes

reportes referentes a la migración de burbujas en combustibles nucleares, con el objeto de hacer ver que estos trabajos no coinciden en un mismo coeficiente de difusión para las burbujas, simplemente porque han sido llevados a cabo bajo diferentes condiciones experimentales, como se puede apreciar en la tabla (3.1.2). Esta situación sugiere la necesidad de investigar aún más sobre este problema.

Sin embargo, llevan a cabo un estudio en el que buscan determinar el mecanismo de difusión de las burbujas y encuentran que sus resultados no se apegan a ninguno de los mecanismos propuestos hasta el momento y por lo tanto proponen un nuevo mecanismo de difusión superficial no localizado, en el que se considere la interacción de los átomos del material que se desplazan sobre la superficie de la burbuja y los átomos de gas que ésta contiene.

Dollins⁽¹⁹⁾ concluye que el coeficiente de difusión encontrado por Buescher y Meyer para burbujas influidas por un gradiente de temperatura de 1000°C/cm, temperatura alrededor de 2000 °C, para burbujas de Helio en UO₂ con radios en el intervalo $R > 100\text{Å}$ y $R < 1\mu\text{m}$, dado por la ecuación:

$$D_B = \frac{1.19 \times 10^{-22} e^{(-100\text{kcal/KT})}}{R^3} \quad (3.1.35)$$

con : R = radio de la burbuja.

TABLA (3.1.2)⁽¹⁸⁾

Resumen de reportes referentes a migración de burbujas en combustibles nucleares

Referencia	Grad. de Temp. °C / cm	Intervalo de Temp. °C	Diámetro de Burbujas	Material	Comentarios sobre mecanismos de Difusión
Gulden ⁽¹⁶⁾	0	1400-1500	24-140 Å	UO ₂ irradiado	Difusión volumétrica para R>37Å Mecanismo desconocido para R<37Å
Cornell y Bannister ⁽²⁰⁾	0	1500-1600	60-220 Å	UO ₂ bombardeado con iones	La velocidad aumenta con el tamaño Variación con modelos aceptados
Barnes y Mazey ⁽²¹⁾	Magnitud desconocida.	No fue medida	100-600 Å	UO ₂	No se encontró relación entre el tamaño y la velocidad
Williamson y Cornell ⁽²²⁾	Magnitud desconocida.	1250-1450	50-250 Å	UO ₂	Mecanismo de difusión superficial.
Whapham ⁽²³⁾	10 ⁶	1600	sólo 100Å	UO ₂	Se reportan velocidades de 10 ³ Å/s pero no se comenta nada sobre el mecanismo de difusión
Oldfield y Brown ⁽²⁴⁾	3.9 x 10 ⁴	1955-2410	0.2-2 μm	UO ₂	Una nucleación sobresaliente, impide el movimiento.
DeCrescente y Selleck ⁽²⁵⁾	500	750	100-2000 Å	UC	Mecanismo de difusión superficial
Selleck y Weaver ⁽²⁶⁾	75-880	985-1585	200-1400 Å	UN	No se observó dependencia con el tamaño pero se propone difusión superficial.
Michels y Poeppel ⁽²⁷⁾	5400	1585-1850	1-10 μm	(U,P _u)O ₂ irradiado	No se determinó dependencia con el tamaño pero los autores indican difusión superficial.

K = constante de Boltzman

T = temperatura absoluta

Es muy recomendable debido a que si extrapolamos para burbujas con un átomo de gas, encontramos que el coeficiente de difusión es de $3.68 \times 10^{-17} \text{ cm}^2/\text{s}$, que comparado con el coeficiente de difusión de un átomo de gas, de $3.8 \times 10^{-18} \text{ cm}^2/\text{s}$, difieren por un orden de magnitud, lo cual se considera como una buena aproximación. Hasta ahora, sabemos que las burbujas pueden moverse al azar o en una dirección preferente en base a diferentes mecanismos de difusión. A continuación veremos la manera en que estas condiciones de tamaño, gradientes y mecanismos de difusión, influyen en las variaciones de las concentraciones de burbujas en el material combustible.

3.2 COALESCENCIA DE BURBUJAS

Al interaccionar dos burbujas, con radios y números de átomos distintos, se puede formar una tercera, que contenga la suma de los átomos y un radio diferente. A este fenómeno se le llama coalescencia y ha sido estudiado por varios autores. En un trabajo presentado por Chandrasekhar⁽²⁸⁾, éste hace un análisis del fenómeno de coagulación, partiendo de tener una concentración uniforme de átomos simples por unidad de volumen en un medio infinito, homogéneo e isotrópico, y que en $t=0$ comienzan

a moverse al azar pudiendo interaccionar entre ellos. Al cabo de un tiempo, por estas interacciones, se formarán en el material "coagulos" esféricos con varios átomos, siendo posible asignar a los coagulos radios y coeficientes de difusión, en función del número de átomos que contienen; a este tiempo se tiene en el medio ya no una concentración uniforme de átomos simples sino de coagulos de distintos números de átomos. Estas concentraciones seguirán cambiando al transcurrir el tiempo. Concluye Chandrasekhar que la probabilidad de interacción P_{iK} entre dos coagulos con K e i átomos y concentraciones $C_i(i,t)$ y $C_K(K,t)$ que se mueven al azar en el material está dada por :

$$P_{iK} = 4 \pi R_{iK} D_{iK} \left(1 + \frac{R_{iK}}{\sqrt{D_{iK}t}} \right) \quad (3.2.1)(a)$$

donde $R_{iK} = R_i + R_K$ y $D_{iK} = D_i + D_K$ con R_i, R_K, D_i, D_K radios y coeficientes de difusión de los coagulos con K e i átomos de gas.

Cabe hacer notar que por la interacción de los coagulos K e i se forma un tercero con $n = i + K$ átomos y además que, si nos restringimos a intervalos de tiempo $\Delta t \gg R^2/D$ podemos desprezciar el segundo término en el paréntesis de la ecuación (3.2.1)(a), de tal manera que nuestra probabilidad queda como :

$$P_{iK} = 4\pi D_{iK} R_{iK} \quad (3.2.1)(b)$$

Dada la similitud del problema, Gruber⁽²⁹⁾, valiéndose del resultado obtenido por Chandrasekhar, obtiene la variación de las concentraciones por coalescencia de burbujas de gas Xenón que se mueven al azar, o influidas por un gradiente de temperatura en el material combustible de un reactor nuclear. Se aclara que los resultados obtenidos por Chandrasekhar son generales ya que se pueden escoger, de cualquier forma, los valores del radio y el coeficiente de difusión de tal manera que Gruber, en base a sus suposiciones, plantea un modelo particular para analizar el fenómeno de coalescencia de burbujas. Gruber añade en su tratamiento las siguientes condiciones además de las que ya había establecido Chandrasekhar, que son:

- 1) No hay resolución de átomos de gas en las burbujas, o sea, que estas no pueden perder átomos de gas.
- 2) Se considera que el gas en la burbuja es ideal, siguiendo la ecuación (2.3.2)
- 3) Las burbujas están en equilibrio, establecido por la ecuación (2.3.1)
- 4) Las burbujas se mueven por mecanismo de difusión superficial al azar e influidas por un gradiente de temperatura.

En base a las suposiciones 2 y 3 y al hecho de que después de la interacción de dos burbujas tipos K e i, la burbuja resultante tiene $n = K + i$ átomos de gas, es fácil demostrar que el radio de la nueva burbuja está dado por:

$$R_n^2 = R_i^2 + R_K^2 \quad (3.2.2)$$

La variación de las concentraciones $C_i(i,t)$, $C_K(K,t)$ en un intervalo de tiempo Δt , ya sea que se muevan al azar o en una dirección preferente está dada por el producto de la probabilidad de interacción, P_{iK} , y las concentraciones C_i , C_K de burbujas por unidad de volumen.

Si el caso es de movimiento al azar, la probabilidad P_{iK} estará dada por la ecuación (3.2.1)(b) con D_{iK} dado por la ecuación (3.1.27)(a) y R_{iK} por la ecuación (2.3.3).

Es decir:

$$P_{iK} = 6a_0^4 D_S \left(\frac{8\gamma}{3^0 RT} \right)^{3/2} (n_i^{1/2} + n_K^{1/2}) (n_i^{-2} + n_K^{-2}) \quad (3.2.3)$$

Entonces, la variación de las concentraciones de burbujas tipos i, K que se mueven al azar en el material combustible en un intervalo de tiempo Δt , estará dado por :

$$\frac{\Delta C_{iK}}{\Delta t} = 6a_0^4 D_S \left(\frac{8\gamma}{3^0 RT} \right)^{3/2} (n_i^{1/2} + n_K^{1/2}) (n_i^{-2} + n_K^{-2}) C_i C_K$$

(3.2.4)

Para hacer ahora el tratamiento de la coalescencia de bur

burujas que se mueven en el material combustible en una misma dirección vemos, en la ecuación (3.1.35), que por la influencia de un gradiente de temperatura las burbujas se mueven en una misma dirección de tal manera que para que las burbujas entren en coalescencia, las más grandes (y por lo tanto más lentas), deben ser alcanzadas por las más pequeñas. Siendo así, podemos definir un volumen de un cilindro de radio $R_i + R_K$ y longitud $(V_i - V_K) \Delta t$. Entonces, la variación de las concentraciones de burbujas tipo i con mayores de tipo K estará dada por el producto de las concentraciones de burbujas tipos K e i, multiplicadas por el volumen de colisión o probabilidad de interacción. Dicha variación de concentraciones estará dada como :

$$\frac{\Delta C_{iK}}{\Delta t} = (R_i + R_K)^2 (V_i - V_K) C_i C_K \quad (3.2.5)$$

de aquí resulta que la probabilidad de interacción de burbujas influidas por un gradiente de temperatura está dada por $P_{iK} = (R_i + R_K)^2 (V_i - V_K) \Delta t$

Substituyendo las ecuaciones (3.1.35) y (2.3.3) en (3.2.5) se encuentra que :

$$\frac{\Delta C_{iK}}{\Delta t} \left(\frac{3D_S E_a \nabla T}{S^2 K T^2} \right) \left(\frac{3^{\circ} RT}{8 \nabla T} \right) (n_i^{-1/2} - n_K^{-1/2}) (n_i^{1/2} + n_K^{1/2})^2 C_i C_K \quad (3.2.6)$$

Resumiendo, las ecuaciones (3.2.4) y (3.2.6) predicen la variación de las concentraciones de burbujas por coalescencia $\frac{\Delta C_{iK}}{\Delta t}$, ya sea que se muevan al azar o en una dirección preferente. Si se hubiera considerado que las burbujas se mueven por mecanismos de difusión volumétrica, nos habríamos encontrado que podría haber coalescencia de burbujas que se mueven al azar, más no de aquellas que son influidas por un gradiente de temperatura ya que como la velocidad de la burbuja en este caso es independiente del radio, sus velocidades resultarán iguales, independientemente del número de átomos que contengan.

Estas variaciones de las concentraciones de burbujas en el material combustible por coalescencia son importantes, ya que de esta manera las burbujas pueden crecer y contribuir al aumento del volumen del combustible. A continuación se verá la forma en que las burbujas, en el fenómeno de "resolución", pueden ser destruidas por interacción con un fragmento de fisión aliviándose por una parte el hinchamiento del combustible y por otra contribuyendo al escape de gas.

3.3 RESOLUCION DE BURBUJAS

El mecanismo de "resolución" consiste en la pérdida de átomos de una burbuja o la desaparición de la misma. En particular se tratará este mecanismo a partir de la in-

teracción de un fragmento de fisión con burbujas de átomos de gas Xe, contenidos en el material combustible. Los efectos que resultan de esta interacción son que: átomos de gas en la burbuja regresan a la malla de combustible, aliviando su hinchamiento, y que se propicie el escape de gas.

A este respecto se han desarrollado dos modelos; el de resolución total y el de resolución parcial. El primero supone que todos los átomos regresan a la malla del combustible por interacción con un fragmento de fisión, mientras que en el mecanismo de resolución parcial la burbuja pierde solo un número dado de sus átomos de gas. Nos interesa encontrar, para cada uno de los mecanismos, el parámetro de resolución o probabilidad de que los átomos de gas regresen al combustible para ver de que manera este fenómeno afecta a las concentraciones en el material combustible. Cabe señalar que en ambos modelos los fragmentos de fisión capaces de producir la mayor resolución tienen como características una masa casi igual a la de un átomo de gas Xe, una carga positiva alta y una energía de aproximadamente 100 Mev. al nacer como se vio en la sección (2.2)

El mecanismo de resolución macroscópico propuesto por Turnbull⁽³⁰⁾, sostiene que las burbujas serán destruidas totalmente por la interacción con un fragmento de fisión

provocando que todos los átomos de la burbuja regresen al material combustible.

Para encontrar el parámetro de resolución macroscópico se supone que en el combustible existe una concentración C_n de burbujas por cm^3 , cada una con radio R y n átomos de gas. Ahora, si el fragmento de fisión recorre una distancia $S_{f.f.}$, que depende directamente de la pérdida de energía por unidad de longitud, todas las burbujas que se encuentran en el volumen $\pi R^2 S_{f.f.}$ serán destruidas. Si en el material combustible se producen $2 F$ fragmentos de fisión por unidad de volumen el número de burbujas destruidas por unidad de tiempo por unidad de volumen en este modelo macroscópico será de :

$$2F (\pi R^2 S_{f.f.}) C_n \quad (3.3.1)$$

Es así que la probabilidad de que una burbuja sea destruida totalmente, o parámetro de resolución macroscópico, está dado en base a la ecuación (3.3.1) como:

$$b' = 2 F \pi R^2 S_{f.f.} \quad (3.3.2)$$

Nelson ⁽³¹⁾ obtuvo la sección transversal por átomo para la interacción entre un fragmento de fisión y un átomo de gas en reposo, a partir de la probabilidad de transferencia de energía en una dispersión elástica y bajo un potencial de interacción Coulombiano entre los núcleos, sin considerar efectos de pantalla de los electrones.

Esta sección está dada por :

$$d\sigma(E_{f.f.}) = 4\pi a_B^2 \left(\frac{M_{f.f.}}{M_\Delta}\right) Z_{f.f.}^2 Z_\Delta^2 \left(\frac{E_R^2}{E_{f.f.}}\right) \frac{1}{E_\Delta^2} dE_\Delta \quad (3.3.3)$$

donde a_B es el radio de Bohr, E_Δ es la energía del átomo después de la interacción, E_R la energía de Raydberg, $Z_{f.f.}$, $M_{f.f.}$, Z_Δ , M_Δ , las cargas y masas del fragmento de fisión y átomos de gas respectivamente.

Ahora vamos a calcular el parámetro de resolución microscópico que nos indique, dado un flujo de fragmentos de fisión, el número de átomos de gas que regresan a la malla de combustible al interaccionar con éste.

Nelson supone que la energía necesaria para que un fragmento de fisión logre sacar a un átomo de gas de una burbuja debe estar dada dentro de un intervalo, $E_{\Delta \min}$ (energía mínima suficiente para abandonar la burbuja, ya que si el átomo de gas está lejos de la superficie de la burbuja, tendrá que interaccionar con otros átomos de gas para abandonarla y penetrar en la malla del combustible) y $E_{\Delta \max}$ donde $E_{\Delta \max} \gg E_{\Delta \min}$. Siendo así, la sección transversal para un átomo de gas que recibe una energía en el intervalo ($E_{\Delta \min}$, $E_{\Delta \max}$) se obtiene integrando la ecuación (3.3.3) dentro de estos límites, de tal forma que:

$$\sigma(E_{f.f.}) = 4\pi a_B^2 \left(\frac{M_{f.f.}}{M_\Delta}\right) Z_{f.f.}^2 Z_\Delta^2 \left(\frac{E_R^2}{E_{f.f.}}\right) \frac{1}{E_{\Delta \min}} \quad (3.3.4)$$

Si ahora tomamos en cuenta que el fragmento de fisión pierde dE/dx energía por unidad de longitud durante su reco-

rrido desde el lugar en que nace hasta la burbuja, podríamos en base a la ecuación (3.3.4) calcular una sección transversal promedio dada la energía del fragmento de fisión. Como la dispersión es elástica, la mínima energía que puede tener fragmento de fisión para provocar resolución esta dada por $E_{\Delta \text{min}}/\Lambda$, donde $\Lambda = 4 M_{f.f.} M_{\Delta}/(M_{f.f.} + M_{\Delta})^2$ y la máxima por $\bar{E}_{f.f.}$, que es la energía promedio con la que llega después de haber interactuado con electrones o núcleos, durante su recorrido desde el lugar en que nace hasta la burbuja. En base a esto la sección transversal promedio por átomo de gas, estará dada por :

$$\bar{\sigma}(E_{f.f.}) = 4\pi a_B^2 \left(\frac{M_{f.f.}}{M_{\Delta}}\right) z_{f.f.}^2 z_{\Delta}^2 \left(\frac{\Lambda E_R^2}{\bar{E}_{f.f.} E_{\Delta \text{min}}}\right) \ln\left(\frac{\bar{E}_{f.f.}}{E_{\Delta \text{min}}}\right)$$

(3.3.5)

Si ahora tomamos una burbuja con n átomos de gas bajo la influencia de un flujo $\phi_{f.f.}$ (número de fragmentos de fisión por unidad de área por unidad de tiempo) y una probabilidad de interacción $\bar{\sigma}(E_{f.f.})$ por átomos de gas, el número de átomos expulsados por segundo por cada burbuja estará dada por :

$$n \phi_{f.f.} \bar{\sigma}(E_{f.f.}) \quad (3.3.6)$$

Si la ecuación (3.3.6) la dividimos entre los átomos de gas tendremos que la probabilidad por unidad de tiempo

de que un sólo átomo de gas abandone la burbuja o parámetro de resolución microscópico, está dado por :

$$b = \phi_{f,f} \bar{\sigma} (E_{f,f}) \quad (3.3.7)$$

El parámetro más utilizado es el de resolución microscópica propuesto por Nelson, ya que no se observa y es poco probable que burbujas grandes desaparezcan por interacción con un fragmento de fisión. Con este parámetro de resolución, es posible determinar la forma en que varía una concentración de burbujas por resolución. En la siguiente sección, se hace un análisis de la interacción de burbujas con defectos del material como dislocaciones, y fronteras de grano que contribuyen al oponerse al escape de gas al hinchamiento del material combustible,

3.4 INTERACCION DE BURBUJAS CON DISLOCACIONES Y FRONTERAS DE GRANO,

Hasta ahora el medio en que se mueven las burbujas ha sido considerado homogéneo e isótópico, sin embargo, en la realidad nos encontramos con que existen defectos en el material que influyen en el comportamiento de las burbujas y consecuentemente en el hinchamiento del combustible y el escape de gas.

Forst⁽³²⁾ y Scaterwood⁽³³⁾, suponen que una burbuja que se mueve en el material combustible influida por un gradiente de temperatura encontrará durante su recorrido hacia la -

frontera de grano obstáculos o defectos del material como dislocaciones o bien las mismas fronteras de grano. En base a esto se distinguen cuatro regiones en el material combustible donde se moverán las burbujas. Dos de las regiones estarán libres de cualquier defecto (1 y 3), la número 2 será una disloción del material y por último la frontera de grano. Esto se representa en la figura (3.4.1)

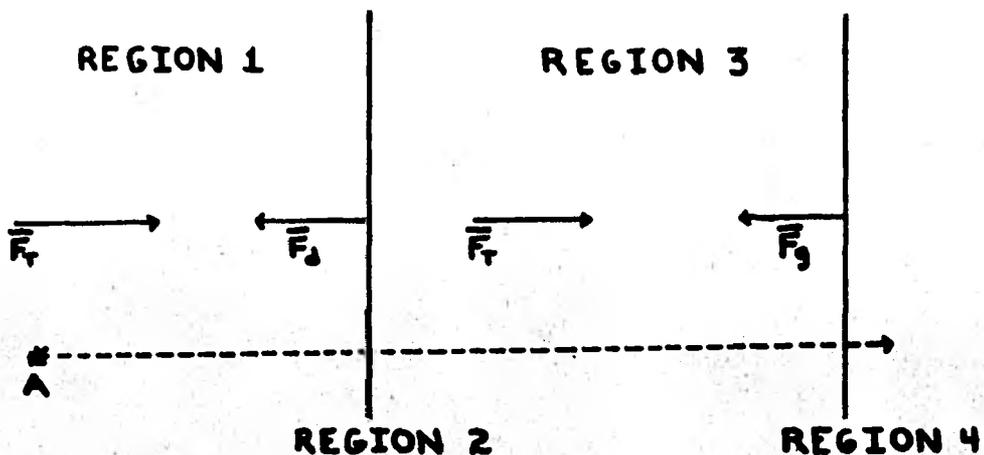


Fig. (3.4.1) Las regiones 1 y 3 están libres de defectos y \bar{F}_T es la fuerza debida al gradiente de temperatura que actúa sobre la burbuja. En las regiones 2 y 4 actúan tanto \bar{F}_T como las de dislocación \bar{F}_d y frontera de grano \bar{F}_g , respectivamente que se oponen al movimiento de la burbuja.

Dependiendo de la región en que se encuentre una burbuja ésta se verá afectada por una fuerza determinada. Estas fuerzas que aparecen en la figura (3.4.1) \bar{F}_T , \bar{F}_d y \bar{F}_g están dadas como ⁽³²⁾;

$$\text{Gradiente Térmico: } \bar{F}_T = \frac{2\pi R^3 Q^* \nabla T}{\Omega T} \quad (3.4.1)$$

$$\text{Dislocación : } \bar{F}_d = 2GV^2 \cos \theta \quad (3.4.2)$$

$$\text{Frontera de Grano: } \bar{F}_g = \pi R \gamma_f \text{ sen } 2 \theta \quad (3.4.3)$$

donde ; R = radio de la burbuja

T = temperatura

∇T = gradiente de temperatura

Q^* = calor de transporte para difusión superficial
(10^{-11} erg/mol),

Ω = volumen molecular (4×10^{-23} cm³/molécula)

G = módulo de elasticidad
V = vector de Burger } $GV^2 = 10^{-4}$ dinas

θ = ángulo que existe entre la fuerza debida al gradiente de temperatura y las fuerzas de la dislocación o frontera de grano, según el caso.

γ_f = constante de tensión superficial de la frontera de grano, (300 dinas/cm)

Dados los valores de cada uno de los parámetros de las ecuaciones (3.4.1), (3.4.2), (3.4.3), y suponiendo que no hay resolución, a partir del sentido de cada una de las fuerzas como aparecen en la figura (3.4.1), haremos una descripción del comportamiento de una burbuja que suponemos parte del punto A influida por la fuerza debida al gradiente de temperatura, ecuación (3.1,35). Cuando la burbuja llega a la dislocación (región 2), supongamos que ésta ejerce una fuerza mayor y en sentido opuesto a la \bar{F}_T de tal manera que la

burbuja queda atrapada en la dislocación. Sin embargo, como la burbuja puede absorber átomos de gas y entrar en coalescencia con otras burbujas aumenta de tamaño de tal manera que la fuerza \bar{F}_T , que varía como R^3 , logra vencer la fuerza de la dislocación y pasa a la región 3 donde se ve afectada de nuevo sólo por la fuerza debida al gradiente de temperatura. Cuando llega a la frontera de grano, como en el caso de la dislocación volvemos a suponer que se ejerce una fuerza, ecuación (3.4.3), mayor y opuesta a \bar{F}_T de tal manera que quedara atrapada hasta que, debido a la coalescencia y absorción de átomos de gas, alcanza un radio determinado y podrá escapar del grano de material. Cabe mencionar que la interacción de burbujas con dislocaciones y fronteras de grano evita, en cierta forma, el escape de gas y contribuye así al aumento de volumen en el combustible.

Para que una burbuja pueda escapar de una dislocación o frontera de grano, basta con que las fuerzas estén en equilibrio o sea que $\bar{F}_T = \bar{F}_d$ y $\bar{F}_T = \bar{F}_g$. En base a este hecho es posible calcular los radios de escape R_d y R_g de una dislocación y frontera de grano para burbujas que, influidas por un gradiente de temperatura, tratan de escapar del grano de combustible.

Igualando las ecuaciones (3.4.1) y (3.4.2) tenemos que, para escapar de una dislocación, el radio de la burbuja está dado por :

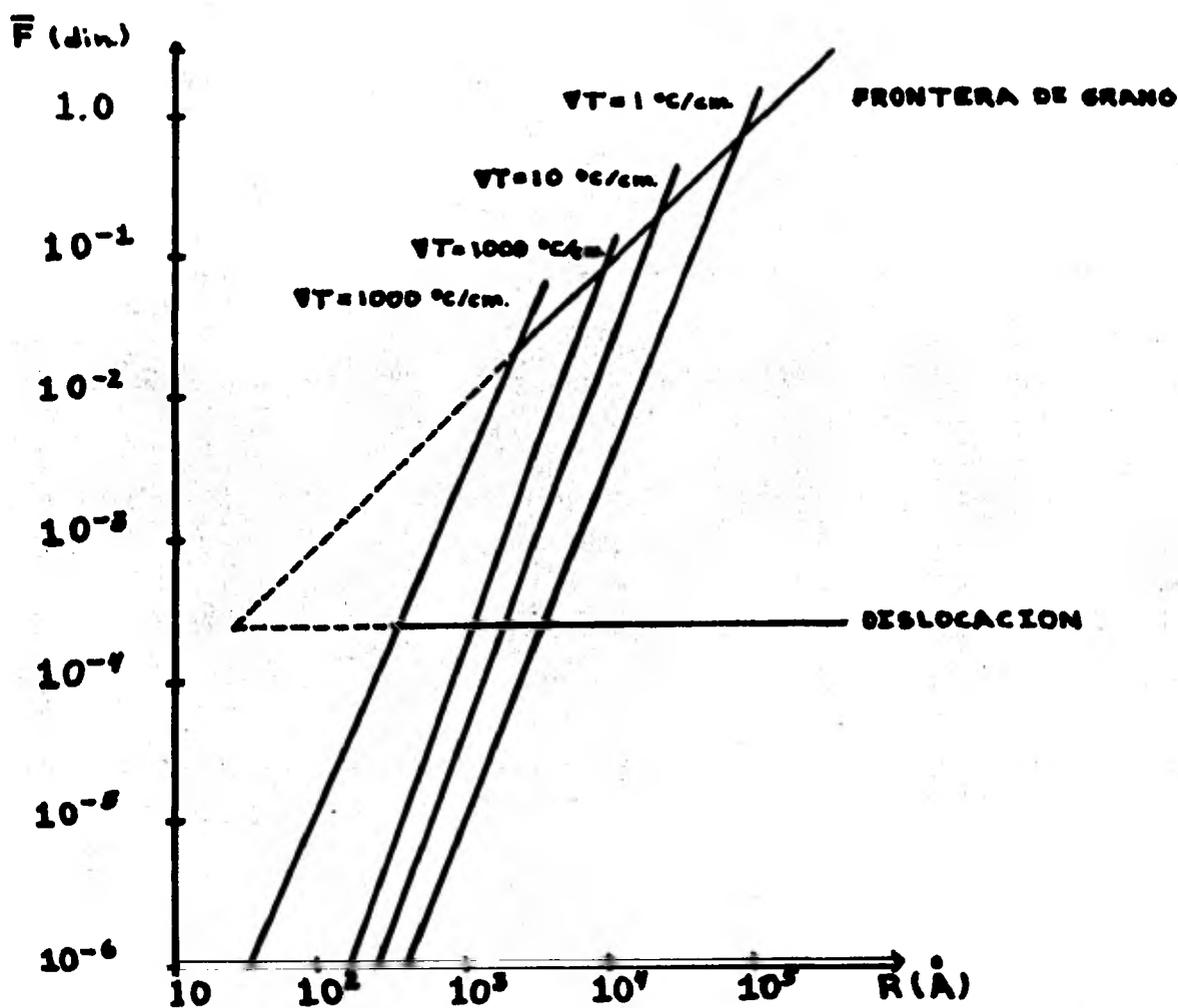


Fig. (3.4.2) Radios de escape para burbujas en dislocaciones y fronteras de grano.

$$R_d = \left(\frac{GV^2 \cos \theta \Omega T}{\eta Q^* \nabla T} \right) \quad (3.4.4)$$

En la misma forma, igualando las ecuaciones (3.4.1) y (3.4.3) se encuentra el radio de una burbuja que escapa de la frontera de grano, dado por :

$$R_f = \left(\frac{R_f \sin 2 \theta \Omega T}{2 Q^* \nabla T} \right) \quad (3.4.5)$$

En base a las ecuaciones (3.4.4) y (3.4.5) se construyó una gráfica, figura (3.4.2), en la que se pueden encontrar los valores de los radios de escape de burbujas para una temperatura de 1727°K y un ángulo θ de 45° para cuatro diferentes gradientes de temperatura.

Se puede concluir de la figura (3.4.2) que cabe la posibilidad de que una burbuja, que parte del punto A, tenga de antemano un radio $R \geq R_d$ y $R < R_f$ de tal manera que al pasar por la dislocación no quede atrapada, y llegue a la frontera de grano donde tiene que esperar hasta alcanzar un radio $R > R_f$ para escapar del grano de combustible. Si la burbuja, en otro caso, partiera de A con un radio $R > R_f$ podrá escapar sin ningún problema.

Para terminar este Capítulo, si hemos dividido al combustible en cuatro regiones, debemos conocer el número de burbujas en cada una de ellas, tomar en cuenta si se encuentran fijas o en movimiento, los fenómenos de coalescencia y resolución y finalmente su interacción con dislocaciones y fronteras de grano para, dado su tamaño, calcular en cada región la contribución al aumento de volumen y de su suma

total el hinchamiento de la barra de combustible y finalmente, tomando en cuenta las que se encuentran en la frontera de grano, el escape de gas.

En el siguiente Capitulo se discutirán algunos modelos sobre el hinchamiento del combustible y el escape de gas.

CAPITULO IV

MODELOS QUE ESTUDIAN EL HINCHAMIENTO Y EL
ESCAPE DE GAS EN EL COMBUSTIBLE NUCLEAR

Hasta ahora, en los Capítulos II y III de ésta tesis vimos que durante la irradiación del combustible nuclear aparecen como fragmentos de fisión isótopos de gases inertes Xe y Kr que, debido a su poca solubilidad en el material combustible, forman dentro de éste burbujas de átomos de gas que se ven involucradas en fenómenos como: crecimiento, migración, coalescencia, resolución e interacción con dislocaciones y fronteras de grano.

De la información de las burbujas y los fenómenos arriba mencionados se derivan dos efectos macroscópicos en el material combustible que son: el escape de gas y el hinchamiento o aumento de volumen del combustible. El escape de gas se atribuye a las burbujas que, dada su movilidad, pueden escapar del grano de combustible, mientras que el hinchamiento o aumento de volumen, se debe a las que quedan atrapadas en la matriz, las dislocaciones y las fronteras de grano del combustible. Dado que estos dos fenómenos, como ya se dijo, aparecen cuando el material combustible es irradiado, la importancia de su estudio radica en que deben ser considerados para propósitos de diseño del núcleo del reactor y para llevar a cabo análisis de seguridad.

Para estudiar estos dos efectos teóricamente, es necesario determinar la variación de las concentraciones $C_n(n,t)$ de burbujas que contienen n átomos de gas, al tiempo t .

Para esto a su vez, es necesario resolver un sistema de n ecuaciones de balance que toman en cuenta los fenómenos mencionados

en el Capítulo anterior, de los cuales depende la variación en el tiempo de las concentraciones de burbujas con n átomos de gas $C_n(n,t)$; o sea:

$$\frac{d C_n(n,t)}{dt} = - \left| \begin{array}{l} \text{burbujas con } n \text{ átomos de gas que se pierden} \\ \text{por coalescencia con burbujas de } i \text{ átomos de} \\ \text{gas con } i = 1, 2, 3, \dots \end{array} \right| - \left| \begin{array}{l} \text{burbujas con } n \text{ átomos de gas} \\ \text{que se pierden por resolución} \end{array} \right| - \left| \begin{array}{l} \text{burbujas con } n \text{ átomos de gas} \\ \text{que se escapan del grano de} \\ \text{combustible.} \end{array} \right| + \left| \begin{array}{l} \text{burbujas con } n \text{ átomos de gas} \\ \text{que se forman por coalescencia de burbujas con } i, K \text{ átomos de gas con } i+K=n \end{array} \right| + \left| \begin{array}{l} \text{burbujas con } n \text{ átomos} \\ \text{de gas que se forman} \\ \text{por resolución.} \end{array} \right| \quad (4.1.1)$$

Sin embargo, en la realidad, además de la variación de las concentraciones de burbujas en el tiempo, también pueden variar, - como veremos más adelante, por la posición de las burbujas dentro del grano. Entonces, el problema se vuelve aún más complejo de tal manera que algunos autores tratan, ya no el problema general que incluya todos los fenómenos de la ecuación (4.1.1) y la dependencia espacial, sino solamente aquellos que consideran más importantes.

En consecuencia, el propósito ahora es hacer una descripción de algunos modelos orientados a calcular el hinchamiento y el escape de gas del material combustible, haciendo hincapié en los puntos que se consideran más importantes de cada uno de ellos y tratando de establecer un cierto orden para destacar los diferentes enfoques en lo que se refiere al tratamiento del proble-

ma. En un principio, como veremos a continuación, los modelos se desarrollaron con el objeto de analizar por separado estos dos fenómenos. Sin embargo, dado que ambos se presentan simultáneamente durante la irradiación del material combustible, los modelos más completos procuran llevar a cabo simultáneamente el análisis de estos dos fenómenos tomando en cuenta la dependencia de uno con otro.

Entonces, empezaremos con un trabajo de Booth⁽³⁴⁾ en el que indica que el objetivo de su estudio es encontrar un modelo con el cual sea posible calcular, en una forma rápida y sencilla, la fracción de gas que escapa del material combustible contenido por la camisa protectora durante las diferentes facetas de operación de un reactor nuclear. Este método está compuesto por una parte teórica y otra experimental y supone, para la primera, que :

- a) El material combustible está formado por granos esféricos de un mismo tamaño, de radio a .
- b) El gas se encuentra distribuido uniformemente en estos granos de combustible como átomos de gas.
- c) Los granos de combustible durante la operación del reactor no cambian de forma ni tamaño.

En lo que respecta a la parte experimental, requiere que :

- 1) Dé muestras del combustible ya irradiado, medir la fracción

fe de gas Xe que escapa de éstas al ser calentadas a una temperatura T_r durante un tiempo t .

2) Determinar, en la barra de material combustible, durante la faceta específica de operación del reactor en la que se quiere calcular el escape de gas, las temperaturas: axial (T_a) y superficial (T_s),

3) Conocer el tiempo t que permanece el material combustible en el reactor a las temperaturas descritas en el inciso 2.

A partir de las suposiciones de los párrafos a), b) y c), el estudio teórico procede de la siguiente manera: se resuelve el problema de la difusión en un grano esférico de radio a , de los átomos de gas cuya concentración está distribuida uniformemente en la esfera, es constante en $t = 0$ y nula en su superficie. Siendo así, la fracción f_e de átomos de gas que escapan del grano está dada por una serie infinita de términos, que Booth propone se puede aproximar por las siguientes ecuaciones, dependiendo del valor de f_e :

$$\text{Si } f_e > .20, f_e = 6(Dt/a^2\pi)^{1/2} - 3Dt/a^2 \quad (4.1.2)$$

$$\text{Si } f_e < .20, f_e = 6(Dt/a^2\pi) \quad (4.1.3)$$

En ambas ecuaciones :

$D = D_0 e^{-E_d/KT}$ es el coeficiente de difusión del gas en función de la temperatura T , (Capítulo III).

a = es el radio del grano esférico de combustible.

t = es el tiempo.

Entonces, en base al valor de $D' (Tr) = \frac{D_0 e^{-E_d/KT}}{a^2}$ es posible encontrar el valor de la constante de difusión a cualquier otra temperatura $T^\circ C$ mediante la ecuación :

$$D' (T^\circ C) = D' (Tr) e^{x p \left[\frac{45\,000}{1.906} \left(\frac{1}{1673^\circ C} - \frac{1}{T^\circ C + 273^\circ C} \right) \right]} \quad (4.1.6)$$

con la que se puede calcular la fracción de gas que escapa a cualquier temperatura, conociendo el tiempo al que permanece el combustible a dicha temperatura.

Para refinar su modelo, Booth calcula de nuevo teóricamente una fracción F_E de átomos de gas que escapan de un grano esférico de radio a, bajo las mismas condiciones del caso anterior, sólo que ésta vez incluye un término de fuente de átomos de gas para tomar en consideración al material combustible en condiciones de operación del reactor. Esta fracción a la temperatura $T^\circ C$ resulta ser :

$$F_E (T^\circ C) = \frac{0.57}{\sqrt{2D' (T^\circ C)t}} + 1 - \frac{1}{\sqrt{2D' (T^\circ C)t}} - \frac{6 e^{-1}}{\sqrt{4D' (T^\circ C)t}} + \frac{6 e^{-\sqrt{2D' (T^\circ C)t}}}{\sqrt{4 D' (T^\circ C)t}} \quad (4.1.7)$$

Como podemos observar, esta fracción $F_E(T^\circ C)$ puede ser calculada a cualquier tiempo t y temperatura $T^\circ C$, ya que $D'(T^\circ C)$ se puede calcular a partir de la ecuación (4.1.6)

Sin embargo, la ecuación (4.1.7) nos da la fracción de gas que escapa de un solo grano esférico, de tal manera que si queremos calcular el escape total F_{ET} de una barra de material combustible, es necesario sumar las contribuciones de todos los granos que la componen, suponiendo que cada uno se encuentra a una temperatura uniforme e independiente de los demás. Dicha fracción de escape total F_{ET} obtenida por Booth aplicando de Simpson (Integración numérica) a la ecuación (4.1.7), esta dada por:

$$F_{ET} = \frac{1}{6} (F_E(T_a) + 4 F_E(T_m)) T_m : ((T_a + T_s)/2) \quad (4.1.8)$$

donde T_a y T_m son las temperaturas axial y media en la barra de combustible, que deben ser medidas experimentalmente como se mencionó en el inciso 2. Hecho esto, $F_E(T_a)$ y $F_E(T_m)$ se pueden calcular a partir de la ecuación (4.1.7) para, finalmente, con la ecuación (4.1.8) encontrar la fracción de escape total.

Para hacer una verificación experimental de su modelo, Booth de terminó el valor de la constante de difusión para un combustible en particular, el cual se sometió a ciertas condiciones de operación de un reactor y se midieron, en la barra de material combustible, las temperaturas T_a , T_s y el tiempo t , que estuvo sometida a estas temperaturas. Los resultados obtenidos por Booth con su modelo concuerdan en forma muy aproximada con los medidos experimentalmente.

Sin embargo, este método presenta algunas limitaciones como :

- i) No incluye en el análisis al fenómeno de coalescencia, sección 3.2.
- ii) No toma en cuenta que además de átomos de gas escapan burbujas de gas.
- iii) Suponer que el material combustible está compuesto por granos esféricos en vez de tener su estructura real.
- iv) No considera que los granos de combustible cambian de tamaño al aumentar la temperatura.
- v) Al medir experimentalmente la fracción de gas que escapa de la muestra de combustible, no toma en consideración que parte del gas que escapó de los granos queda atrapado en espacios vecinos del material combustible.
- vi) No incluye en el análisis a las dislocaciones y fronteras de grano que influyen en el escape de gas, como se vió en la sección 3.4.
- vii) Para que éste método pueda ser utilizado adecuadamente, es necesario determinar la constante de difusión a partir de una muestra de material combustible similar al que se tiene en el reactor, en el cual se quiere determinar el escape de gas.

Finalmente, derivadas de la verificación experimental del modelo hecha por Booth, aparecen como recomendaciones importantes

que las muestras utilizadas para determinar la constante de di fusión, no debe haber sufrido una recristalización apreciable, para cumplir con la suposición c) y además es necesario considerar al material combustible en condiciones reales de operación al determinar las temperaturas T_a , T_s y T_m .

A continuación se hará el análisis de un modelo diseñado para calcular el hinchamiento del material combustible.

Considerando que el hinchamiento o aumento de volumen del mate rial combustible es en gran parte consecuencia del fenómeno de coalescencia, ya que en base a este fenómeno las burbujas pueden aumentar de tamaño, Gruber⁽²⁹⁾ desarrolla un modelo para calcular dicho aumento de volumen en base a las siguientes suposiciones:

- 1) Las burbujas se encuentran en equilibrio con el material combustible (ecuación (2.3.1)).
- 2) El gas contenido por las burbujas obedece la ecuación de estado del gas ideal (ecuación (2.3.2)).
- 3) El material en que se mueven las burbujas es perfecto e infinito.
- 4) Las burbujas se desplazan por mecanismo de difusión super ficial, (sección(3.1)).
- 5) Las burbujas no se ven afectadas por el fenómeno de reso lución (sección (3.3)).

Entonces, durante la irradiación del material combustible los átomos de gas que aparecen como fragmentos de fisión, forman burbujas y éstas burbujas se mueven e interaccionan entre sí aumentando de tamaño, de tal manera que el aumento de volumen ΔV en el material combustible provocado por éstas burbujas para un tiempo t de irradiación estará dado por :

$$\Delta V = \frac{4}{3} \pi \sum_{n=1}^{\infty} R_n^3 C_n(n,t) \quad (4.1.9)$$

donde R_n es el radio de la burbuja que contiene n átomos de gas y $C_n(n,t)$ es la concentración de burbujas con n átomos de gas al tiempo t .

Entonces, para calcular ΔV es necesario determinar, para el tiempo t de irradiación el valor de $C_n(n,t)$ con $n = 1, 2, 3, \dots, \infty$. En base a las suposiciones hechas por Gruber y tomando en cuenta que las concentraciones de burbujas pueden variar únicamente por coalescencia, las variaciones de las concentraciones de burbujas en función del tiempo t de irradiación se encuentran resolviendo el sistema de ecuaciones de conservación:

$$\frac{d C_n(n,t)}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{\infty} (1 + \delta_{i, \frac{n}{2}}) (P_{n-i,i}) C_{n-i} C_i - \sum_{i=1}^{\infty} (1 + \delta_{ni}) (P_{ni}) C_n C_i \quad (4.1.10)$$

con las condiciones iniciales :

$$\begin{aligned} C_n(n,0) &= N_0 & n &= 1 \\ C_n(n,0) &= 0 & n &> 0 \end{aligned}$$

donde N_0 es una constante y δ_{in} es la delta de Kronecker,

$$\delta_{ni} = 1, \quad i = n$$

$$\delta_{ni} = 0, \quad i \neq n$$

y P_{ni} es la probabilidad de interacción de burbujas tipo n con burbujas tipo i

El primer término de este sistema de ecuaciones nos da la producción de burbujas tipo n por coalescencia de burbujas tipo $n-i$ con burbujas tipo i y el segundo, la pérdida de burbujas tipo n por coalescencia con burbujas tipo i , con $i = 1, 2, \dots, \infty$.

En un primer caso, Gruber calcula el hinchamiento del material combustible cuando las burbujas se mueven al azar en base a las variaciones en el tiempo de las concentraciones $C_N(n,t)$, a partir del sistema de ecuaciones de conservación (4.1.10), donde las probabilidades P_{n-i} , i y P_{ni} se calculan a partir de la ecuación (3.2.3). En un segundo caso, Gruber calcula el hinchamiento cuando las burbujas se mueven en una misma dirección, bajo la influencia de un gradiente de temperatura. En estas condiciones las probabilidades deben ser calculadas a partir de la ecuación (3.2.5)

En ambos casos, Gruber resuelve el sistema de ecuaciones diferenciales de conservación por el método de diferencias finitas con la ayuda de una computadora, calculando las variaciones de las concentraciones $C_n(n,t)$ en base al valor de $\Delta C_n C_i / \Delta t$ (que representa el número de colisiones entre burbujas tipo n y i en el intervalo Δt) dado por las ecuaciones (3.2.4) y

(3.2.6), para difusión superficial al azar y para difusión en una sola dirección respectivamente.

La solución para el segundo caso presenta el siguiente problema: Las condiciones iniciales para el sistema de ecuaciones (4.1.10) indican que al principio se tienen sólo burbujas iguales (con $n=1$), pero estas burbujas no pueden interaccionar debido a que todas tienen la misma velocidad y se mueven en la misma dirección, como puede verse de la ecuación (3.1.30). Para resolver este problema, Gruber supone que inicialmente se tiene coalescencia por medio de un mecanismo de difusión superficial al azar, durante un intervalo de tiempo suficientemente grande para obtener una distribución de burbujas de diferentes tamaños, pero pequeño, para que el mecanismo que predomine en todo el proceso sea el de difusión superficial influido por un gradiente de temperatura.

Como esperaba Gruber, en los resultados teóricos que obtiene con su modelo se observa, en ambos casos, que a medida que transcurre el tiempo las concentraciones de las burbujas pequeñas disminuyen mientras que las concentraciones de las burbujas más grandes aumentan.

Gruber no lleva a cabo ninguna verificación experimental de su modelo. Sin embargo, como veremos más adelante, este modelo es empleado como una base de cálculo en modelos más completos.

Por otra parte, cabe mencionar que este modelo de Gruber presenta los siguientes inconvenientes :

- i) Ignora las interacciones con dislocaciones y fronteras de grano.
- ii) Descarta, al suponer que el medio es infinito, variaciones en las concentraciones de burbujas por escape de gas.
- iii) Supone que el gas contenido en las burbujas obedece la ecuación de estado de gas ideal.
- iv) No contempla la posibilidad de migración de las burbujas por otros mecanismos de difusión que no sea el superficial.

En un trabajo posterior, Gruber⁽³⁵⁾ refina su modelo incorporando el tratamiento de Booth para calcular el escape de gas, desarrollando métodos para calcular simultáneamente el escape de gas y el hinchamiento del material combustible durante un transitorio rápido (aumento de temperatura muy grande en un intervalo de tiempo muy corto debido, por ejemplo, a pérdida de refrigerante), dentro de un marco que considera la variación del tamaño de las burbujas en base al fenómeno de coalescencia y el escape de gas por migración de las burbujas hacia la frontera de grano. Las suposiciones en que se basó Gruber para desarrollar estos métodos son las siguientes:

- 1) Las burbujas se encuentran en equilibrio con el material combustible, (ecuación (2.2.1)).
- 2) El gas contenido con las burbujas obedece la ecuación de

estado de gas ideal, (ecuación (2.3.2)).

- 3) Las burbujas se desplazan por el mecanismo de difusión superficial, (sección (3.1)).
- 4) Se calcula la fracción de gas que escapa como resultado de dos procesos separados: cuando las burbujas se mueven al azar o cuando se mueven en una misma dirección influidas por un gradiente de temperatura.
- 5) La resolución de burbujas, (sección (3.3)) y producción de átomos de gas (ecuación (2.1.1)), durante el tratamiento dado su corto tiempo de duración, son despreciables.
- 6) Se ignoran los efectos de las dislocaciones ya que por la coalescencia de las burbujas y las condiciones del transitorio rápido, éstas alcanzan rápidamente el radio de escape R_d , (ecuación (3.4.4)).
- 7) El material en que se mueven las burbujas es infinito
- 8) El material combustible está formado por granos de un mismo tamaño, de radio a .
- 9) Los granos de material combustible durante el transitorio no cambian de forma ni tamaño.
- 10) El gas se encuentra distribuido uniformemente en estos granos de combustible como pequeñas burbujas.

Entonces, si consideramos que las burbujas se mueven al azar, en base a las suposiciones 4, 5 y 6, la base teórica para calcular el escape de gas es casi la misma que utilizó Booth en su modelo y que dio por resultado las ecuaciones (4.1.2) y (4.1.3). Sin embargo, en este modelo existe una diferencia importante y es que ahora se considera la difusión de burbujas de gas que se mueven por mecanismos de difusión superficial y no la difusión de átomos de gas.

Por lo tanto, Gruber calcula el escape de gas utilizando la siguiente solución de la ecuación de difusión, obtenida por Booth⁽³⁴⁾:

$$f_B = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp(-S^2 \pi^2 D_{BS} t / a^2) \quad (4.1.11)$$

y en caso de que $D_{BS} t / a^2 \leq 1$, menciona que es más recomendable calcular el escape de gas utilizando la solución aproximada dada por Booth en la ecuación (4.1.3). En ambas ecuaciones :

D_{BS} es el coeficiente de difusión superficial de las burbujas, t es el tiempo durante el cual el escape de gas ocurre, a es el radio del grano de combustible.

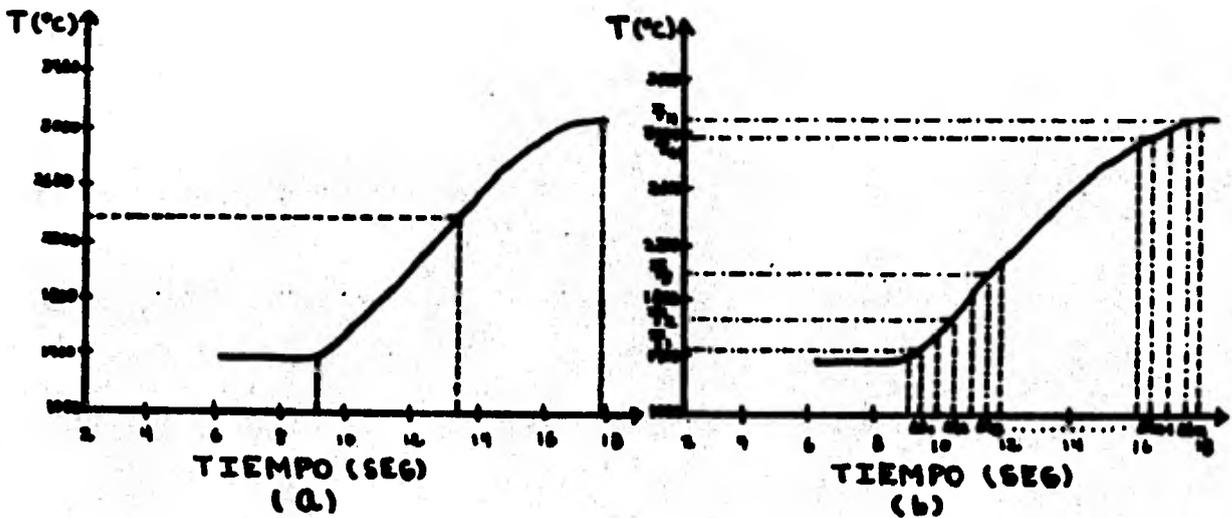
Como la temperatura en el material combustible tiene un aumento muy grande en un intervalo de tiempo muy corto, figura (4.1.1), el evento es dividido por Gruber en N subintervalos de tiempo Δt_j , $j = 1, 2, \dots, N$ con el objeto de calcular el escape de gas en cada uno de estos subintervalos para que una vez cubierto todo el evento se sumen y se obtenga así el escape to-

tal. Para cada subintervalo Δt_j , utilizando una notación de incrementos, la ecuación (4.1.11) está dada por :

$$\Delta f_B = \frac{6\Delta(D_{BS}t)}{a^2} \sum_{S=1}^{\infty} \exp(-S^2 \pi^2 D_{BS}t/a^2) \quad (4.1.12)$$

y la ecuación (4.1.13) por :

$$\Delta f_B = 3\Delta(D_{BS}t) \left[\left(\frac{1}{\sqrt{\pi^2 a^2 D_{BS}t}} \right) - \left(\frac{1}{a^2} \right) \right] \quad (4.1.13)$$



La Fig.(4.1.1)(a) muestra el aumento de temperatura en el material combustible durante un transitorio rápido. También se puede apreciar una temperatura promedio \bar{T}_p para el evento (b) muestra el aumento de temperatura en el material combustible durante un transitorio rápido sólo que esta vez el evento se divide en subintervalos de tiempo Δt_j con $j=1, \dots, N$, para asociar a cada uno de estos una temperatura promedio \bar{T}_j .

de tal manera que para el subintervalo j : $\Delta (D_{BS}t)_j = D_{BSj} \Delta t_j$, ya que la temperatura y el radio de la burbuja se consideran constantes en cada subintervalo.

De esta manera se evita la incertidumbre que se produciría al calcular el escape de gas a una sola temperatura promedio \bar{T}_n para todo el evento.

Para utilizar la ecuación (4.1.12) o bien, la ecuación (4.1.13), es necesario determinar para cada subintervalo j el valor del producto $(D_{BS}t)_j$. La base para realizar dicho cálculo es que la distancia de migración media de la burbuja es proporcional a $\sqrt{D_{BS}t}$. Entonces, el valor apropiado para cada subintervalo j estará dado por :

$$\sqrt{(D_{BS}t)_j} = \frac{\sqrt{(D_{BS}t)_0} + \sqrt{(D_{BS}t)_0 + \Delta (D_{BS}t)_j}}{2} \quad (4.1.14)$$

donde el valor del término $(D_{BS}t)_0$ nos da la suma de los productos $D_{BSi} t_i$ anteriores al producto j de acuerdo a la ecuación :

$$(D_{BS}t)_0 = \sum_{i=1}^{j-1} D_{BSi} \Delta t_i$$

Ahora, para analizar el escape de gas en el caso de que las burbujas se vean influidas por un gradiente de temperatura, su pongamos para empezar que las burbujas son de un mismo tamaño con el objeto de encontrar la fracción f'_g de gas que escapa -

cuando todas se mueven con una misma velocidad y en una misma dirección según la ecuación (3.1.35).

Entonces, si cada uno de los granos esféricos contiene una distribución uniforme de burbujas y cada una se desplaza una distancia ℓ , Fig. (4.1.2). En base a esta figura, la parte sombreada en la intersección de las dos esferas es el gas retenido por el grano, mientras que el resto escapa.

Si la fracción de gas que escapa está dada por :

$$f'_B = \left(1 - \frac{V'}{V} \right) \quad (4.1.15)$$

donde $V = \frac{4}{3} \pi a^3$ es el volumen total del grano y $V' = \pi h^2 / 6 (3a - h/2)$ el volumen de la intersección de las dos esferas. Substituyendo estos valores en la ecuación (4.1.15) se obtiene que :

$$f'_B = 1 - \left(\frac{h^2 (3a - 1/2h)}{8 a^3} \right) \quad (4.1.16)$$

Para hacer el análisis durante el transitorio rápido, de nuevo se divide al evento en j subintervalos de tiempo Δt_j durante los cuales las burbujas se desplazan una distancia Δh_j de tal

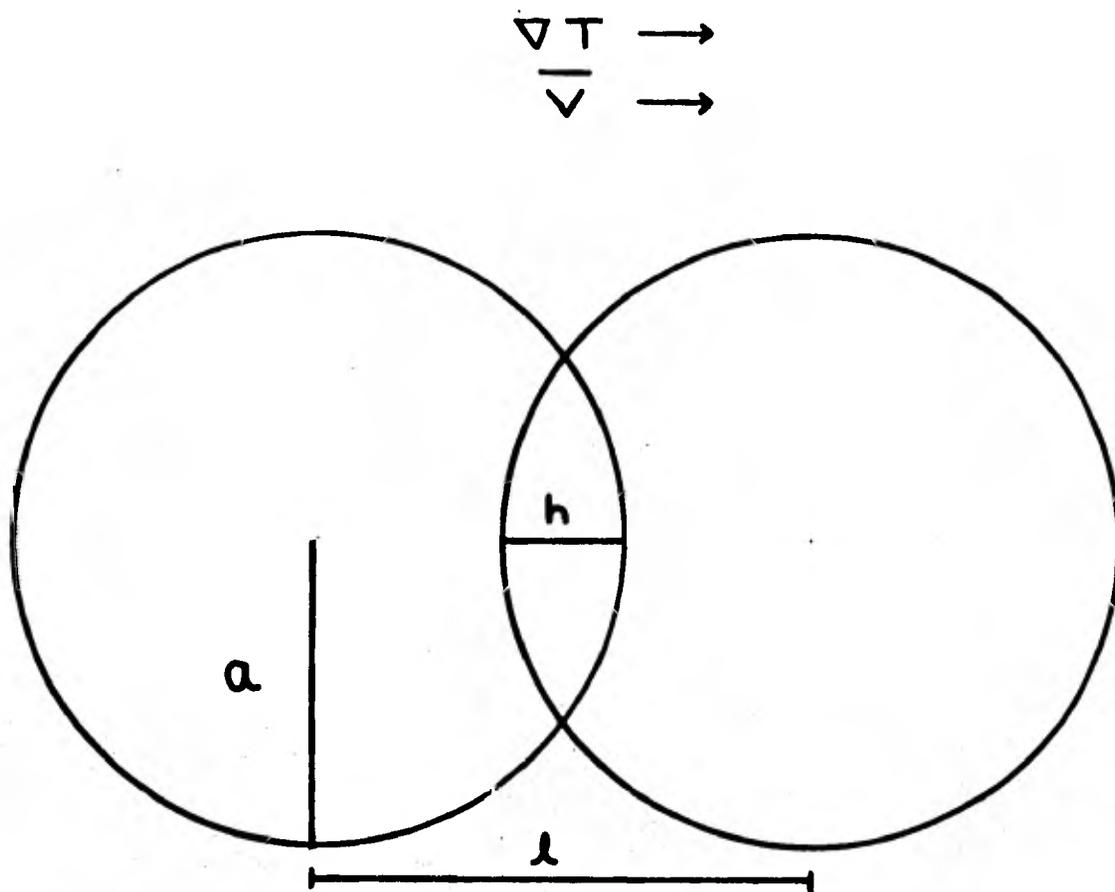


Fig. (4.1.2) Esquema que muestra el escape de gas por migración influida por un gradiente de temperatura en un grano de material combustible.

manera que, en notación de incrementos:

$$\Delta f'_B = \frac{3h}{4a^3} \left(\frac{h}{4a} - 1 \right) \Delta h_j \quad (4.1.17)$$

donde $\Delta h_j = -\bar{V} \Delta t_j$, $h = \frac{h_0 + \Delta h_j}{2}$ y h_0 es la suma de los incrementos anteriores a_j .

Para llegar a la ecuación (4.1.17) Gruber supuso que las burbujas en el grano eran de un mismo tamaño, se movían en una misma dirección y a una misma velocidad. Como ya se mencionó, si éste es el caso, no se presenta el fenómeno de coalescencia. Por lo tanto, Gruber procede como en su modelo anterior, en base a la ecuación (4.1.10) y a las probabilidades de coalescencia (3.2.3), cuando las burbujas se mueven al azar, determina una distribución de concentraciones de burbujas, en el primer sub-intervalo de tiempo, las cuales tendrán una velocidad promedio \bar{V}_1 , calculada con la ecuación (3.1.35), y con esta \bar{V}_1 , calcula el escape de gas por medio de la ecuación (4.1.17). En el segundo intervalo de tiempo, dada la distribución de concentraciones del intervalo anterior y de nuevo en base a la ecuación (4.1.10), sólo que ahora ya se tienen burbujas de diferentes tamaños, considerando las probabilidades de coalescencia para migración de las burbujas en una misma dirección (ecuación (3.2.5)), se calcula la distribución de concentraciones de burbujas en este segundo intervalo y con ella una velocidad \bar{V}_2 y en base a ésta el escape de gas. De ésta manera, sucesivamente, se calcula el escape de gas en cada intervalo para finalmente, una vez cubierto el intervalo completo del evento, sumarlos y obtener el

escape total de gas.

Para calcular el escape en el primer intervalo, en el caso de movimiento al azar, se parte la ecuación (4.1.10) y las probabilidades de coalescencia dadas por la ecuación (3.2.3), se determina una distribución de concentraciones de burbujas y en base a ésta un coeficiente de difusión promedio D_{BS} , que se utiliza a su vez para calcular el escape de gas en este intervalo con la ecuación (4.1.12) ó (4.1.13) dependiendo, como ya se aclaró, del valor de D_{BS} . En el segundo intervalo, en base a la distribución de concentraciones de burbujas que resulta del primero, se vuelve a calcular una distribución de concentraciones de burbujas y con esta distribución un nuevo coeficiente de difusión promedio y por último el escape de gas. De esta manera, como en el caso de la difusión de burbujas en una misma dirección, los escapes de gas en cada intervalo se suman y se obtiene el escape total.

Después de llevar a cabo un análisis con el modelo durante un transitorio rápido, Gruber encuentra que si se hace una comparación del escape de gas por migración de las burbujas al azar y por migración en una misma dirección, es mayor en el último caso y por otra parte, en ambos casos el hinchamiento del material combustible se determina en base a las burbujas que no lograron abandonar el grano de dicho material combustible.

Sin embargo, algunas inconveniencias de este modelo son :

- i) La aproximación que se hace al suponer que el material combustible está compuesto por granos esféricos en lugar de su estructura real.
- ii) No considera que los granos de combustible cambian de tamaño al aumentar la temperatura.
- iii) Se introduce incertidumbre al determinar el radio R_B de la burbuja al suponer que el gas en la burbuja satisface la ecuación de estado de gas ideal.
- iv) Incorre en una incongruencia al calcular las probabilidades de coalescencia en un grano de material finito de radio a con las ecuaciones (3.2.3) y (3.2.5), ya que éstas se encontraron a partir de la suposición de que el medio en que se efectúa la coalescencia es infinito (ver sección 3.2).
- v) La suposición del equilibrio de las burbujas en el material combustible durante el transitorio rápido no parece ser muy adecuada pues hay que tomar en cuenta que, durante un transitorio rápido, después de la coalescencia de dos burbujas cabe la posibilidad de que la tercer burbuja que se forma no alcance el equilibrio antes de interaccionar con otra burbuja.
- vi) No se toma en cuenta que durante el escape de gas por migración al azar de las burbujas se introduce una dependencia espacial de las burbujas en el grano, ya que aquellas que se encuentran cerca de la frontera del grano tienen -

una probabilidad mayor de escapar que las que se encuentran en el centro y éstas a su vez tienen más probabilidad de interactuar con otras burbujas.

El modelo de Gruber para calcular el hinchamiento y el escape de gas del material combustible durante un transitorio rápido podría ser utilizado en condiciones normales de operación del reactor. Sin embargo, Poeppel⁽³⁶⁾ estima que para construir un modelo capaz de calcular efectos macroscópicos, como el escape de gas y el hinchamiento del material combustible, es necesario que se incluya un análisis del comportamiento del gas generado por fisión, a nivel de microestructura, tratando de simular a la vez las condiciones en que se encuentra el material combustible durante las distintas facetas de operación del reactor. Para esto, su modelo se basa en las siguientes suposiciones.

- 1) Las burbujas se encuentran en equilibrio con el material combustible (ecuación (2.3.1)).
- 2) El gas contenido por las burbujas satisface la ecuación de estado de Harrison (sección (2.3)).
- 3) Los mecanismos de difusión probables de las burbujas podrán ser: difusión superficial, difusión volumétrica y transporte de vapor (sección (3.1)).
- 4) Se presenta el fenómeno de coalescencia en regiones del combustible libres de defectos, dislocaciones y fronte-

ras de grano, donde se mueven al azar o en la dirección de un gradiente de temperatura como se consideró en el estudio de Gruber (sección (3.2)).

- 5) Se presenta el fenómeno de resolución microscópica, según el tratamiento de Nelson (sección (3.3)).

En este modelo, con el propósito de encontrar la fracción Δf_s de gas que escapa y el hinchamiento ΔV del material combustible, es necesario establecer las variaciones en el tiempo de la concentración de burbujas $C_n(n,t)$ tomando en cuenta las suposiciones antes mencionadas. Dichas variaciones son determinadas resolviendo el siguiente sistema de ecuaciones diferenciales de conservación :

$$\frac{d C_n(n,t)}{dt} = -\Delta n C_n^2 - B_n C_n + E_n \quad (4.1.18)$$

En esta ecuación, el término $-\Delta n C_n^2$ nos da la pérdida de burbujas del mismo tipo, $-B_n C_n$ es la pérdida de burbujas tipo n por coalescencia con burbujas tipo i con $i \neq n$ por resolución microscópica y por escape de burbujas de tipo n en la frontera de grano, y finalmente, E_n es la producción de burbujas tipo n por coalescencia de burbujas de tipo i con burbujas de tipo K donde $i + K = n$ y por resolución microscópica de burbujas tipo $n+1$.

Una vez establecidos estos términos, resolviendo el sistema de ecuaciones planteado por la ecuación (4.1.18) por cálculo numé

rico en una computadora, es posible determinar el valor de la distribución de burbujas $C_n(n,t)$ a través del tiempo para determinar el hinchamiento del material combustible en base a la ecuación :

$$\Delta V = \sum_{\text{tipos de burbujas}} \sum_{\text{todos los tamaños}} C_n(n,t) \frac{4}{3} \pi R_n^3 \quad (4.1.19)$$

tomando en cuenta tres tipos de burbujas, que son: las que se encuentran atrapadas en dislocaciones, las atrapadas en la frontera del grano, o bien, las que se encuentran en regiones del material libre de defectos. R_n es el radio de la burbuja que contiene n átomos de gas.

El escape de gas Δf_s está dado por :

$$F_s = A \sum_{\text{tipos de burbujas}} \sum_{\text{todos los tamaños}} C_n(n,t) V_n N \quad (4.1.20)$$

donde A es el área del grano donde interaccionan las burbujas, V_n es la velocidad de las burbujas tipo n y n el número de átomos de gas contenidos por la burbuja. Cabe aclarar que las burbujas atrapadas por dislocaciones no son tomadas en cuenta.

Considerando al material combustible sometido a condiciones de transitorio rápido (accidente por pérdida de refrigerante), Poeppel calcula el hinchamiento del material combustible, a partir de una distribución de burbujas que determina para condiciones normales de operación y que experimentalmente coincide con las observaciones hechas en el material combustible irradiado, y encuentra que se debe principalmente a la

coalescencia de las burbujas que no están atrapadas y se mueven libremente en el material combustible. Para tener una idea de la importancia de este efecto macroscópico, el aumento de volumen que alcanzó el material combustible durante el primer minuto de un evento particular fue del 50%.

En este modelo supuso que las burbujas están en equilibrio con el material combustible. Sin embargo, como vimos anteriormente en el modelo de Gruber⁽³⁵⁾, esta suposición no parece muy adecuada pues hay que tomar en cuenta que, durante un transitorio rápido, después de la coalescencia de dos burbujas cabe la posibilidad de que la tercera que se forma no alcance el equilibrio antes de interaccionar con otra burbuja.

Por otra parte, es recomendable, para obtener mejores resultados, aplicar la ecuación de estado de Schwarzblat que, como ya se discutió, es la más adecuada para calcular el radio de burbujas pequeñas en las que el gas se encuentra a altas densidades y presiones.

Actualmente, dada la trascendencia del problema del equilibrio de las burbujas durante un transitorio rápido, los nuevos modelos para calcular el escape de gas y el hinchamiento del material combustible, como el de Estevez⁽³⁷⁾, trabajan suponiendo que las burbujas no alcanzan el equilibrio.

Para concluir, en este Capítulo, con el objeto de hacer una descripción de la forma en que han ido evolucionando los modelos teóricos para calcular el escape de gas y el hinchamiento

del material combustible, resumimos se parte del análisis del modelo de Booth para calcular el escape de gas haciendo énfasis en las suposiciones en que se basa su modelo. Después, de igual manera que en el anterior, se hizo al análisis del modelo de Gruber para calcular el hinchamiento del material combustible. Sin embargo se puede ver a partir de los objetivos de estos dos modelos que consideran por separado los fenómenos de escape e hinchamiento.

Entonces, en el siguiente paso para mejorar el análisis, Gruber diseña un nuevo modelo basado en los dos anteriores, tomando en cuenta aquellas suposiciones que considera más convenientes y agregando otras nuevas, con el cual es posible calcular simultáneamente, el escape de gas y el hinchamiento del material combustible.

Por otra parte, el modelo de Poeppel tiene el mismo objetivo que este último modelo de Gruber, pero difiere en las suposiciones en que está basado y en la forma de cálculo. Debido a las suposiciones hechas por Poeppel, se considera su modelo como más cercano a la realidad del problema.

Aún así, existen puntos que implican nuevos estudios como la dependencia espacial de las burbujas en el material combustible, la condición de equilibrio de la burbuja que se forma por coalescencia de otras dos durante un transitorio rápido, y en consecuencia, el desarrollo de nuevas formas de cálculo en base a las cuales se desarrollan los nuevos modelos como es el caso del modelo de Estevez⁽³⁷⁾ que contempla estos aspectos.

CAPITULO V

CONCLUSIONES

Por lo que respecta al cálculo del radio de las burbujas, el problema fundamental estriba en la obtención de una ecuación de estado que sea aceptable para el caso de burbujas pequeñas y a altas presiones. De las ecuaciones de estado presentadas la de Schwarzblat, que toma en consideración más variables - para ajustar los resultados experimentales, parece ser la más conveniente para calcular los radios. Sin embargo no se ha utilizado en los modelos presentados.

La determinación del mecanismo de difusión de las burbujas, requiere de más experimentación que permita diferenciar entre los mecanismos de difusión posibles. En la actualidad el mecanismo de difusión no localizado propuesto por Buescher y Meyer, es el que ha llevado a mejores resultados.

El problema fundamental en el tratamiento del fenómeno de coalescencia está en el cálculo de las probabilidades de interacción de las burbujas. Las probabilidades calculadas por el método de Gruber han dado resultados satisfactorios para condiciones normales de operación, pero para condiciones de transitorio rápido es necesario estudiar con más detalle el concepto de equilibrio de las burbujas.

Después de la presentación y análisis de algunos de los modelos que se han elaborado para tratar los problemas del hinchamiento y el escape de gas del material combustible para reactores nucleares, se puede concluir que los aspectos y fenómenos más importantes dentro de estos modelos son: el cálculo de los

radios de las burbujas de gas, la determinación del mecanismo de difusión que siguen, y los fenómenos de coalescencia y de interacción con dislocaciones y fronteras de grano. A continuación se harán algunas observaciones sobre estos fenómenos.

Con respecto a los fenómenos de interacción de las burbujas con dislocaciones y fronteras de grano, solo ha sido considerado en uno de los modelos y se ve necesario que se trate con más detalle.

El tratamiento detallado de los fenómenos que acabamos de mencionar, así como mayor experimentación sobre los mismos, permitirán la formulación de modelos más adecuados para el tratamiento de los problemas del hinchamiento y el escape de gas del material combustible.

R E F E R E N C I A S

- (1) S. Katcoff,
Nucleonics
18 : 201, (1960)
- (2) Robert B. Leighton
Principles of Modern Physics
Ed. McGraw-Hill Book Company
P. 495
- (3) G.J. Dines and G.M. Vinyard
Radiation Effects in Solids
Ed. Interscience Publishers Inc. New York (1957)
- (4) Condon and Odishaw
Handbook of Physics
Ed. McGraw-Hill Book Company
Cap. 5, P. 90 (1967)
- (5) J.C. Slater
Introduction to Chemical Physics
Ed. New York Dover Publications
P. 186
- (6) B.P. Demidovich and J.A. Maron
Mathematical Computation
Ed. Mir Moscu
P. 127

- (7) D. Okrent and W.G. Steele
Trans. An. Nuc. Soc.
26 : 168, (1977)
- (8) J.W. Harrison
J. Nucl. Mater.
31 : 99, (1969)
- (9) G.H. Hatsopoulos and J.H. Keenan
Principles of General Thermodynamics
Ed. John Wiley and Sons, Inc.
P. 242
- (10) A.N.S. Transactions
Vol. 28, 1978
P. 213
- (11) J.O. Hirschfelder
Ind. Eng. Chem.
50 : 375, (1968)
- (12) J. L. Lamarsh
Introduction to Nuclear Reactor Theory.
Ed. Addison - Wesley Publishing Company, Inc.
P. 154
- (13) J. Crank.
The Mathematics of Diffusion
Ed. Clarendon Press Oxford
P. 29

- (14) P. S. Maiya
S. Nucl. Mater
40 : 57, 1971

- (15) TID - 26711 - P1

- (16) M. E. Gulden
J. Nucl. Mater.
23 : 30, 1967

- (17) F. A. Nichols
J. Nucl. Mater
48 : 143, 1969

- (18) B. J. Buescher and R.O. Mayer
J. Nucl. Mater
48 : 148, 1973

- (19) C.C. Dollins
J. Nucl. Mater.
49 : 10, 1973/1974

- (20) R.M. Cornell and G.H. Bannister
Proc. Brit. Ceram. Soc.
7 : 355 (1967)

- (21) R. S. Barnes and D. J. Masey
Electron Microscopy 1964
Vol. A, Proc. Conf. Prague,
1964 (Czech. Acad. Sci.,
Prague, 1965) p. 197

- (22) G. K. Williamson and R.M. Cornell
J. Nucl. Mater
13 : 278 (1964)

- (23) A. D. Whapham
Nucl. Appl.
2 ; 123 (1966)

- (24) W. Oldfield and J. B. Brown
Mater Sci. Eng.
6 : 361 (1970)

- (25) M. A. Decrescente
Pratt and Whitney Aircraft
Report PWA AC-476 (1965)

- (26) S. C. Weaver
Oak Ridge National Laboratory (USA)
Report ORNL - TM - 2016 (1967)

- (27) L. C. Michels and R.B. Beppel
J. Applied Physics
44 : 1003 (1973)

- (28) S. Chandrasekar
Review of Modern Physics
15 : 59, (1943)

- (29) E. E. Gruber
J. Sppl. Phys.
38 : 243 (1967)
- (30) J. A. Turnbull
J. Nucl. Mater
38 : 203 (1971)
- (31) R. S. Nelson
J. Nucl. Mater
31 : 152 (1969)
- (32) R. E. Forst
Nuclear Applications and Technology
9 : 2 (1970)
- (33) R. O. Scatterwood
Nuclear Applications and Technology
- (34) A. H. Booth
AECL - 496 Sept. 1957
- (35) E. E. Gruber
A.N.L. - 8143 Nov. 1974
- (36) R. B. Poeppel
A. N. L.

- (37) R. G. Estevez and A. R. Wazzard
and D. Okrent
Trans. Am. Nucl. Soc.
21 ; 180 (1975)