

Pruebas de situaciones accidentales en combustible de HTR con el dispositivo Küfa

A. I. Kellerbauer y D. Freis

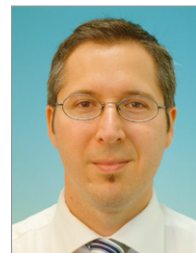
Los materiales cerámicos y de revestimientos de tipo cerámico en el combustible moderno de los reactores de alta temperatura están diseñados para garantizar la estabilidad mecánica y la retención de los productos de fisión en condiciones normales y transitorias, independientemente de los daños producidos en la pila. En accidentes hipotéticos de despresurización y de pérdida de circulación forzada (D-LOFC), los elementos combustibles de los reactores modulares de alta temperatura están expuestos a temperaturas de varios cientos de grados superiores a las de la operación normal, provocando un aumento de la tensión termomecánica sobre las capas de revestimiento. En el Instituto de Elementos Transuránicos (ITU) de la Comisión Europea, se está llevando a cabo un ambicioso programa experimental con el objetivo de caracterizar el rendimiento del combustible de HTR irradiado en dichas condiciones de accidente. Se ha utilizado un dispositivo de brazo frío (Küfa), operativo en las pilas calientes del ITU desde el año 2006, para realizar los experimentos de calentamiento en ocho bolas del combustible HTR irradiado procedente del reactor experimental AVR y de las campañas de irradiación dedicadas en el Reactor de Alto Flujo en Petten, Holanda. Los productos de fisión gaseosos se recogen en un colector de carbón criogénico, mientras que los volátiles están depositados en una placa de condensado refrigerada por agua. Se obtiene una medida cuantitativa de la liberación mediante espectroscopia gamma. Exponemos los resultados experimentales de las pruebas con el dispositivo Küfa, así como el desarrollo en marcha de las nuevas instalaciones experimentales.

The ceramic and ceramic-like coating materials in modern high-temperature reactor fuel are designed to ensure mechanical stability and retention of fission products under normal and transient conditions, regardless of the radiation damage sustained in-pile. In hypothetical depressurization and loss-of-forced-circulation (D-LOFC) accidents, fuel elements of modular high-temperature reactors are exposed to temperatures several hundred degrees higher than during normal operation, causing increased thermo-mechanical stress on the coating layers. At the Institute for Transuranium Elements of the European Commission, a vigorous experimental program is being pursued with the aim of characterizing the performance of irradiated HTR fuel under such accident conditions. A cold finger device (Küfa), operational in ITU's hot cells since 2006, has been used to perform heating experiments on eight irradiated HTR fuel pebbles from the AVR experimental reactor and from dedicated irradiation campaigns at the High-Flux Reactor in Petten, The Netherlands. Gaseous fission products are collected in a cryogenic charcoal trap, while volatiles are plated out on a water-cooled condensate plate. A quantitative measurement of the release is obtained by gamma spectroscopy. We highlight experimental results from the Küfa testing as well as the on-going development of new experimental facilities.

INTRODUCCIÓN

Los reactores de alta temperatura refrigerados por gas (HTR) se caracterizan por la propiedad singular de tener una seguridad intrínseca contra las excursiones de potencia, incluso en condiciones adversas. Con una combinación de baja densidad de potencia, alta masa térmica y alta relación superficie-potencia, el núcleo de un HTR puede soportar ciertos escenarios de accidente sin fallos

mecánicos importantes ni la liberación de productos de fisión. Como consecuencia de un accidente hipotético de despresurización y de pérdida de circulación forzada (D-LOFC), se eliminan todos los sumideros de calor activos. A pesar del hecho de que el calor de desintegración es conducido fuera del núcleo únicamente por mecanismos naturales de transferencia de calor, la temperatura del núcleo va subiendo muy lentamente



ALBAN I. KELLERBAUER

hizo la carrera de física en Stuttgart y Montreal y obtuvo su doctorado en Física de la Universidad de Heidelberg con un trabajo sobre medidas de masa de radionúclidos en el CERN. Tras una beca de investigación científica en el CERN, se incorporó en el Instituto Max Planck para la Física Nuclear en Heidelberg como director de proyecto. Desde 2008, es director científico en el Instituto de Elementos Transuránicos del Joint Research Center (JRC) de la Comisión Europea, donde es responsable del análisis post-irradiación de materiales de vaina y de combustibles HTR.



DANIEL FREIS

estudió Ingeniería Nuclear en la Universidad RWTH Aachen. Tras terminar sus estudios, obtuvo una beca de investigación de tres años en el Instituto de Elementos Transuránicos del Joint Research Center (JRC) de la Comisión Europea, en Karlsruhe, donde trabajaba en simulaciones de accidentes severos con elementos de combustible irradiados del HTR. En Westinghouse Electric Germany GmbH, es el responsable de los proyectos relacionados con el HTR.

a lo largo de muchas horas, antes de alcanzar un nivel de varios cientos de grados por encima de la temperatura de operación (ver, por ejemplo, la referencia [1]).

La cantidad de productos de fisión liberados en condiciones de un accidente así depende en gran medida de la calidad de los elementos combustible (EC). El combustible moderno del HTR contiene partículas TRISO revestidas (PR) (tri-isotrópico estructural) y recubiertas con un amortiguador poroso de carbón, una capa interior de carbón pirolítico, una capa de carburo de silicio y, por último, una capa exterior de carbón pirolítico. Todas juntas, los revestimientos constituyen una barrera contra la liberación de productos de fisión tanto en la operación normal como en condiciones fuera de lo normal. En la figura 1, se muestra una imagen por microscopía electrónica de barrido de un corte de una partícula revestida de combustible TRISO. Con el fin de facilitar datos fiables para el diseño y licenciamiento del reactor, se realizan pruebas experimentales del rendimiento de los EC del HTR, sometidos a condiciones que permiten simular un accidente D-LOFC. La liberación de productos de fisión en función del tiempo (y, por lo tanto, de la temperatura) proporciona conocimientos de los mecanismos físicos y químicos fundamentales del fallo de las PR y del transporte de productos de fisión. Se pueden estudiar tanto las PR individuales y un EC completo. En éste último caso, se puede investigar de manera efectiva un gran número de partículas a la vez, proporcionando un resultado con gran relevancia estadística.

Hace unos 25 años, se desarrolló en Kernforschungsanlage Jülich (KFA), actualmente Forschungszentrum Jülich (FZJ), un método para exponer un EC esférico de HTR a un accidente D-LOFC simulado y simultáneamente recoger todos los productos de fisión liberados. El Küfa (una abreviatura del término alemán "Kühlfingerapparat") es un dispositivo experimental en el cual se pueden calentar EC de HTR hasta una temperatura de 1800°C a presión ambiente en una atmósfera de helio mientras que se mide la liberación de gases de fisión y de productos de fisión volátiles. El aparato original entró en operación en KFA en el año 1984 [2]. Cuando el programa HTR alemán llegó a su fin, se clausuró el Küfa en KFA. En el marco del proyecto europeo HTR-F, se transfirieron al ITU unas partes del Küfa, así como planos y documentos técnicos, en el año 2001 [3]. El nuevo Küfa entró en operación

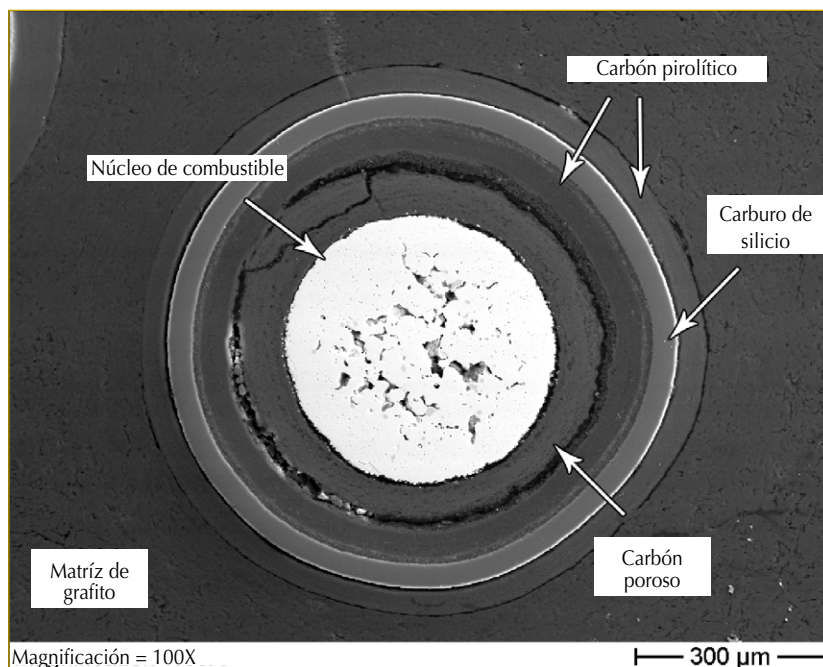


Figura 1. Imagen por microscopía electrónica de barrido de una partícula de combustible TRISO procedente de un elemento combustible HTR irradiado. Se muestran el núcleo de combustible, las capas de revestimiento y la matriz.

en la Unidad de Celdas Calientes del ITU en el año 2005 [4]. Desde entonces, ha sido utilizado para realizar pruebas de accidentes simulados en ocho EC esféricos. El Küfa del ITU es en la actualidad el único dispositivo en el mundo para las pruebas de accidentes del combustible HTR irradiado.

INSTALACIÓN EXPERIMENTAL KÜFA

En la figura 2, se puede observar una vista general de Küfa. Sus componentes principales son una vasija exterior de acero inoxidable en forma de campana, un cilindro de conducción de gas envuelto por un elemento calefactor y un brazo frío móvil. El calentador está montado en un bloque de cobre refrigerado por agua y rodeado por blindajes térmicos. Con el fin de minimizar la absorción de productos de fisión en el horno, se diseñó el Küfa como horno metálico resistivo. Un transformador instalado por detrás de la pila caliente suministra la alta corriente necesaria a baja tensión. Todas las partes de alta temperatura del Küfa están compuestas de tantalio, ya que este material es el menos propenso a la carburización en el punto de contacto con el EC. Se coloca la bola en un rodamiento de tres puntos en el centro del cilindro de conducción de gas. Un termopar mide la temperatura a unos 3 mm por debajo del EC y proporciona la variable de control para la regulación de la potencia del horno. Se realiza un control centralizado de la temperatura del horno, así como

de todos los procesos y parámetros de operación, mediante un programador de lógica programable y un programa informático asociado. Se recogen y se registran todos los parámetros de operación.

En el extremo inferior del brazo frío, en frente del EC, se coloca una placa intercambiable de acero inoxidable. Gracias a la eficiencia de la refrigeración por agua, se mantiene la temperatura superficial de la propia placa a menos de 100°C, incluso a las altas temperaturas del horno. De esta forma, los productos de fisión volátiles como el ^{137}Cs y el ^{110}Agm se van depositando en la placa de condensado con alta eficiencia. Se puede levantar el brazo frío a través de un sistema de esclusas que contiene una válvula de compuerta refrigerada por agua, y se puede intercambiar la placa de condensado de forma semiautomática utilizando un telemanipulador. Posteriormente se transportan las placas usadas a un laboratorio con baja radiación de fondo, donde se registra un espectro gamma con un detector de germanio de alta pureza para cuantificar los isótopos emisores de gamma [4]. Durante el experimento, se realiza una vaciado del dispositivo con helio. El helio entra en el cilindro de conducción de gas por debajo del EC, circulando por la misma y dispersándose en la campana. Desde allí es evacuado por una bomba de membrana a un colector frío de carbón activado y refrigerado con nitrógeno líquido. Los gases de fisión se condensan en el carbón activado, y

se puede medir su actividad mediante un detector gamma de yoduro de sodio montado por debajo del colector frío [5].

EXPERIMENTOS RECIENTES

En el marco del Proyecto Integrado Europeo RAPHAEL (Reactor para generación de calor de proceso, hidrógeno y electricidad), se han irradiado cinco EC HTR tipo Nukem GLE-4.2 en el Reactor de Alto Flujo (HFR) en Petten, Holanda. La campaña de irradiación HFR-EU1bis tuvo una duración de 10 ciclos y un total de 249 días equivalentes a plena potencia. El experimento tuvo como objetivo probar el comportamiento de los EC con un aumento de temperatura, así como con un aumento del quemado y del flujo neutrónico rápido, dando lugar a un aumento del daño inducido por la radiación a las capas de revestimiento [6]. El quemado objetivo fue del 15,4% fisiones por átomo metálico inicial (FIMA), sin embargo, finalmente solo se consiguió un poco más del 11% FIMA en el EC con el quemado más alto. Se mantuvo la temperatura central de los EC a 1250°C durante toda la campaña de irradiación, menos durante un breve salto de temperatura debido a un error del operador implicando al sistema de mezcla de gas en la instalación de irradiación [7]. Tras la irradiación, se trasladaron cuatro de los cinco EC al ITU para calentarlos en pruebas de simulación de accidentes con el Küfa.

En los años 2008 y 2009, se realizaron pruebas de accidentes en las cuatro bolas HFR-EU1bis trasladadas al ITU. A continuación, se presentará como ejemplo representativo el resultado de este experimento de calentamiento con el Küfa de la bola HFR-EU1bis/1. Fue colocada en una de las posiciones superiores de irradiación, por lo tanto presentó un quemado algo menor del 9,34% FIMA y un flujo rápido menor de $2,41 \times 10^{21}$ cm⁻² comparado con los EC irradiados en las posiciones centrales. Debido al corto periodo de enfriamiento desde el fin de la irradiación (menos de tres años), seguían estando presentes los productos de fisión de vida corta relativa ¹⁰⁶Agm y ¹⁰⁶Ru, por

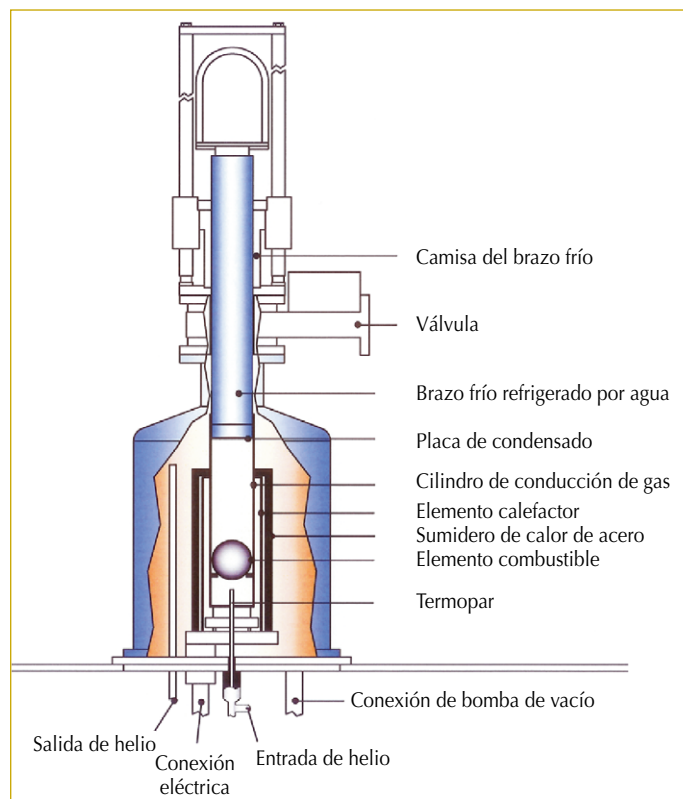


Figura 2: Vista esquemática del dispositivo Küfa en el ITU.

lo tanto ha sido posible medir también su liberación adicionalmente a la de los isótopos de cesio de vida comparativamente más larga. Mientras que el ¹⁰⁶Agm no resulta particularmente relevante en los escenarios de accidente, es de sumo interés en la operación del reactor a temperaturas más altas debido a su alta volatilidad, lo que es de una especial importancia para los variantes del HTR en el futuro, con ciclos directos en los que la contaminación de la turbina de gas puede ser considerable.

La prueba de calentamiento comenzó con una fase larga (200 h) de operación simulada a 1250°C, con el fin de determinar la liberación en equilibrio de ¹⁰⁶Agm durante la operación, así como de dar una idea de la posible contaminación del circuito primario de un futuro HTR. También se evaluó de esta misma forma la contaminación por cesio de la matriz de grafito y, consecuentemente, el potencial fallo de partículas durante la irradiación. Tras la simulación de operación, se llevó a cabo durante 200 h una simulación de accidente de hasta 1600°C (correspondiente al pico nominal de temperatura del combustible obtenido de los cálculos termohidráulicos [1]). Esta fase fue seguida de un calentamiento adicional hasta 1700°C durante 150 h. En

tre cada una de las fases de calentamiento, se enfriaba el EC hasta la temperatura ambiente. En la figura 3, se puede observar un gráfico del perfil de temperatura y las liberaciones fraccionales acumuladas de todos los productos de fisión medidos. Donde no se podía medir las actividades de ¹⁰⁶Agm y de ¹⁰⁶Ru debido a una alta actividad de fondo, en el gráfico se han indicado los límites de detección y las correspondientes barras de error.

DISCUSIÓN

En la curva de liberación de ⁸⁵Kr, no se ha observado ningún salto obvio ni a 1250°C ni durante la simulación de accidente. Además, la baja liberación total de ⁸⁵Kr, muy por debajo del inventario de una sola PR, indica que no se produjo el fallo de ninguna partícula durante el experimento.

Simplemente representa la liberación prevista por la contaminación de uranio libre en la matriz de grafito. La observación más sorprendente es la liberación relativamente alta de cesio, de unos dos o tres órdenes de magnitud superiores a la observada en las bolas de HFR-K6 [4], cuya explicación puede ser una mayor difusión a través de capas de partículas intactas, una contaminación externa de la matriz de grafito, o ambas. Se realizó un análisis detallado en base a un modelo de fallo mecánico, así como de una simulación de difusión, para investigar el origen de la liberación de productos de fisión metálicos observada. Esto dio una liberación fraccional de ¹⁰⁶Agm del orden de 2×10^{-4} durante la fase de irradiación, o aproximadamente un orden de magnitud por debajo del valor medido. Apparently, las causas principales de esta gran fracción de liberación son la alta temperatura de irradiación de 1250°C y la conocida alta volatilidad de plata. La liberación calculada de ¹³⁷Cs y de ¹³⁴Cs por difusión de las partículas intactas es alrededor de 3×10^{-4} , al nivel de la producida por la contaminación de uranio de la matriz. La mayor liberación durante la irradiación por lo tanto tendría que originarse en partículas defectuosas. Tanto para plata como para cesio, en el cálculo hay una sobreestimación de la liberación real medida durante las fases de simulación de accidente.

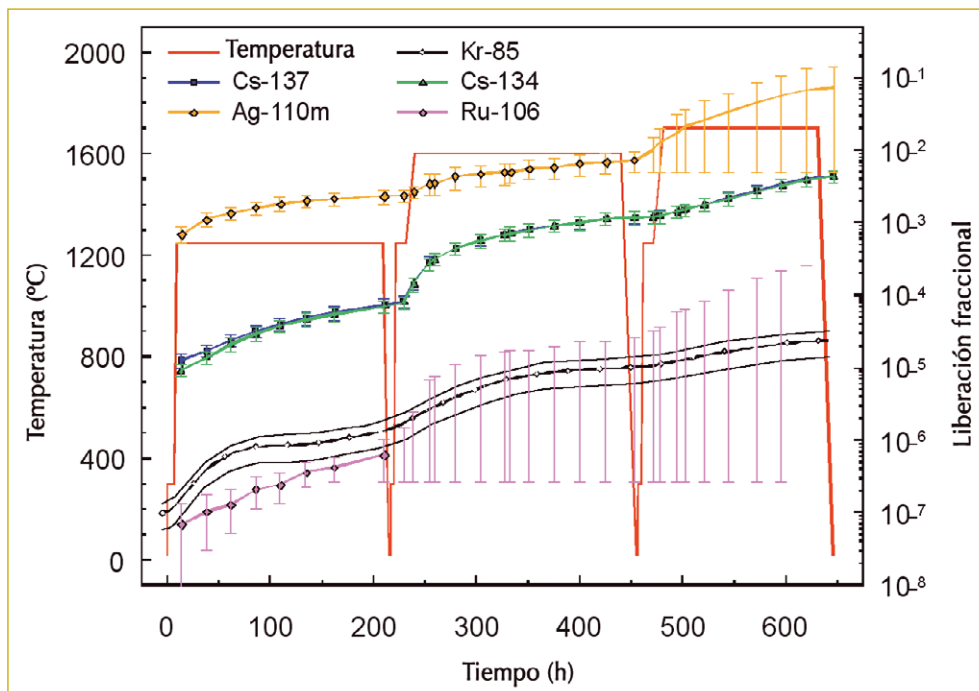


Figura 3: Perfil de temperatura y liberación fraccional de productos de fisión para el elemento combustible HFR EU1bis/1.

El modelo puede reproducir los datos experimentales con una exactitud razonable, suponiendo que la matriz de grafito del EC estuvo contaminado con el inventario equivalente de unas 20 PR, lo que podía haber sido provocado por un aumento de la temperatura de irradiación, dando lugar a mayor difusión a través de los revestimientos intactos de la partícula. También es posible que se produjera una contaminación externa de la matriz de grafito durante la irradiación, derivada de partículas falladas en esta bola o en uno de los otros EC irradiados como parte del experimento HFR-EU1bis. Durante uno de los ciclos de irradiación, la cápsula del EC estuvo sometida a un salto de temperatura imprevisiblemente alto, lo que podía haber dado lugar al fallo de varios EC's, cuyo inventario luego fue liberado en la matriz de grafito. Esta hipótesis también está sustentada por la nivelación de la curva de liberación de cesio durante la tercera fase de calentamiento. Posiblemente se agotaran las "reservas" de productos de fisión en las capas exteriores de las partículas y en la matriz de grafito, no pudiendo la difusión a través de la capa de SiC reponerlas con suficiente rapidez.

CONCLUSIONES Y PERSPECTIVAS

Desde el año 2006, se ha utilizado el nuevo dispositivo Küfa en el ITU para evaluar el comportamiento del combustible HTR en condiciones de accidente D-LOFC. Las simulaciones de accidente realizadas hasta ahora han demostra-

do que los HTR pueden soportar temperaturas de accidente de hasta 1600°C sin perder su seguridad intrínseca [4]. Las temperaturas muy altas de irradiación, y especialmente los saltos de temperatura durante la irradiación, pueden comprometer las capacidades de retención de la capa de SiC. Está claro que son necesarios unos experimentos de simulación de accidente adicionales con Küfa, en condiciones muy controladas, para poder caracterizar completamente su respuesta a condiciones fuera de lo normal. Recientemente se ha realizado la irradiación de otras cinco bolas HTR de producción alemana y china dentro de la campaña de irradiación HFR-EU1. Está previsto que sean sometidas a pruebas de calentamiento con el Küfa en el ITU, en el marco de un proyecto de seguimiento de RAPHAEL.

Además, sería deseable un método directo para la cuantificación de la fracción de partículas falladas en un EC calentado. Con este fin, se puede disolver la matriz de grafito del EC y extraer las PR (desconsolidación). Posteriormente, se puede determinar la condición de las partículas individuales midiendo los inventarios de productos de fisión con distinta volatilidad. Además de indicar el número de partículas defectuosas, puede proporcionar información sobre el comportamiento de liberación de los distintos productos de fisión dentro de la PR y de la matriz. Un dispositivo así fue desarrollado por primera vez y aplicado con el nombre de IMGA (analizador gamma de microesferas irradiadas)

en KFA [8]. Recientemente, se ha realizado con éxito en el ITU la fragmentación de un EC y la separación de sus PR. Un dispositivo IMGA de nuevo desarrollo se está probando actualmente con partículas "dummy" activadas. Otro aspecto importante que está todavía sin analizar es el ingreso hipotético de aire o agua durante un accidente D-LOFC. Los estudios anteriores han demostrado que los EC tienen una capacidad muy limitada para resistir un accidente así [9]. Por lo tanto, son necesarios más trabajos experimentales sobre este problema. Con este fin, un nuevo dispositivo de corrosión Kora (del término alemán "Korrosionsapparat"), inicialmente desarrollado en

KFA Jülich junto con el Küfa, se está construyendo actualmente en el ITU, preparándolo para su utilización en una pila caliente.

Este trabajo ha sido financiado por la Comisión Europea dentro del 6º Programa Marco de Euratom bajo Contrato N° 516508 (Proyecto Integrado RAPHAEL).

REFERENCIAS

- [1] H. Haque, W. Feltes & G. Brinkmann, Nucl. Eng. Design 236 (2006) 475
- [2] W. Schenk, D. Pitzer & H. Nabelek, Jülich Rep. 2234, Jülich, Germany, 1988
- [3] E. H. Toscano et al., 2nd International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, Beijing, China, 2004, p. B13
- [4] D. Freis et al., J. Eng. Gas Turbines Power 132 (2010) 042901
- [5] K. A. Stradal, Jülich Rep. 707-RW, Jülich, Germany, 1970
- [6] M. A. Fütterer et al., Nucl. Eng. Design 238 (2008) 2877
- [7] S. de Groot et al., Nucl. Eng. Design 238 (2008) 3114
- [8] M. J. Kania & C. A. Baldwin, Experts Meeting on MHTGR/HTR Fuel Performance under Accident Conditions, Oak Ridge National Laboratory, 1989
- [9] W. Schenk, R. Gontard & H. Nabelek, Jülich Rep. 3373, Jülich, Germany, 1997