

C. N. E. A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº	AÑO
1	1972

ESTUDIOS Y DESARROLLOS PARA COMBUSTIBLES  
A BASE DE PLUTONIO

04.72.16

H.A. Osuna - C. Aráoz - J.O. Marticorena  
Gerencia de Tecnología  
Comisión Nacional de Energía Atómica  
Buenos Aires, Argentina

RG

061.3:669

C76

1972

RESUMEN

Se describe el programa destinado a la utilización de Plutonio como combustible nuclear. El mismo comprende trabajos que se realizan en tres áreas distintas:

1. Estudio de materiales combustibles a base de Pu.  
Se han programado estudios destinados a posibilitar el desarrollo de este tipo de elementos combustibles, así como la interpretación de su comportamiento. Comprende el estudio de propiedades de óxidos mixtos de  $UO_2$ - $PuO_2$  con o sin irradiación, en áreas de conductividad térmica, generación de gases de fisión, distribución de temperatura, etc.

2. Desarrollo de técnicas de fabricación.  
Los trabajos están destinados a la preparación de cápsulas de irradiación y barras combustibles del tipo Zry- $PuO_2$ - $UO_2$ , para la realización de experiencias para el conocimiento de los materiales y modelos de cálculo y para la preparación de prototipos de demostración. Se estudian asimismo diversas técnicas de fabricación que en una etapa posterior serán de utilidad para la fabricación industrial de este tipo de combustible.

3. Desarrollo de ingeniería para materiales Alfa activos.  
Se ha considerado también necesario el desarrollo de la ingeniería especializada destinada al diseño y construcción de laboratorios y equipos especiales imprescindibles para la realización de este tipo de trabajo. Se describen la instalación en construcción y algunos equipos diseñados especialmente. Se ha tenido en cuenta la máxima participación de la industria nacional en este tipo de obra.

Los trabajos mencionados anteriormente se realizan teniendo presente que serán de utilidad o aplicación en el caso de tener que desarrollar en el futuro combustibles para reactores rápidos.

INTRODUCCION

El comienzo de un programa de construcción de centrales nucleares en la República Argentina, planteó la necesidad de tomar una decisión respecto de la provisión de combustible para dichas centrales.

En una central nuclear, el costo del combustible es una parte importante de la inversión total al cabo de la vida útil de la central. Esto hace que la economicidad de la instalación dependa en forma apreciable del costo y calidad del combustible que se utiliza.

Uno de los aspectos a resolver en un plan de utilización del plutonio como combustible nuclear de potencia, es la necesidad de desarrollar una tecnología de fabricación de elementos combustibles conducente a producirlos de buena cali-

dad y a precios convenientes. El mayor costo de fabricación de este tipo de elementos combustibles respecto a los convencionales a base de uranio, se debe a los problemas de seguridad que presenta su manipuleo.

No es de esperar la concreción de plantas de fabricación de capacidad similar a las de uranio, lo que implica aún una mayor desventaja económica. Por eso, es imperativo estudiar y desarrollar cuidadosamente las técnicas de fabricación que mejor se adapten a las condiciones particulares del momento y del país. Esto implica concretar una tecnología nacional.

ESTUDIO DE MATERIALES COMBUSTIBLES A BASE DE PLUTONIO

Desde el punto de vista de un grupo de trabajo dedicado al estudio de las propiedades de los materiales combustibles, la opción de fabricar y optimizar el combustible nuclear en el país obligaba a encarar un programa de estudio de propiedades de estos materiales que permitiera satisfacer las necesidades de diseño y fabricación del combustible, así como de optimización del funcionamiento de la central.

En la actualidad el material que se ha impuesto y que se usa casi universalmente como combustible nuclear es el  $UO_2$ . En un futuro inmediato comenzará a utilizarse, en reactores térmicos, el óxido mixto de uranio y plutonio, con contenidos de este último menores que 5%, para realizar su reciclado. Hacia fines de esta década o principios de la siguiente, se supone que entrarán en utilización comercial otros materiales que actualmente están en desarrollo o ensayo para reactores rápidos, como los óxidos mixtos, los carburos y los carbonitruros de uranio y plutonio, todos con alto contenido de este último.

Un programa de estudio de materiales combustibles debe prever el trabajo con los distintos materiales que se pueden ir utilizando como combustible en el futuro y el estudio de las propiedades de interés para la utilización del material en un reactor de potencia. Se fijó entonces como objetivo del programa, realizar el desarrollo de los conocimientos necesarios para la optimización del combustible.

Este objetivo es la expresión concisa de una filosofía de trabajo que está implícita en la elección misma del tema de estudio, puesto que si se estudian materiales combustibles para reactores de potencia, estos estudios se harán ante todo con miras a la aplicación de los resultados. Por otra parte, se decidió iniciar los estudios con los problemas que surgieran en el curso de los trabajos de optimización y fabricación del combustible, iniciados con alguna anticipación a la elaboración de este programa y que continuarán paralelamente al mismo. Buscar la fuente de temas de investigación aplicada en los programas de optimización y fabricación

asegura la conexión con problemas y necesidades reales y concretos, como garantía de la utilidad del trabajo encarado. Con respecto a la investigación básica, se piensa que a lo largo del desarrollo de este programa aplicado, se irán haciendo claros los temas básicos de verdadero interés para la CNEA. En ese momento se los transferirá a los grupos de investigación básica en Ciencia de los Materiales, que la CNEA ya tiene bien consolidados y en funcionamiento desde años atrás.

Los trabajos se planean desde tres puntos de vista: materiales a estudiar, propiedades a estudiar, condiciones experimentales.

Materiales a estudiar

Se decidió empezar con el  $UO_2$  por ser el problema inmediato y porque muchos de los datos de este material son aplicables al  $(UPu)O_2$  que se utiliza en reactores térmicos. Luego, en un plazo definido por la disponibilidad de las instalaciones adecuadas, con los óxidos mixtos de uranio y plutonio, al principio con baja y luego con alta concentración de plutonio. Más adelante y dependiendo de estudios de factibilidad de utilización, se entrará a trabajar con materiales no convencionales tales como carburos.

Propiedades a estudiar

Las necesidades inmediatas de los grupos de diseño y fabricación definieron las primeras propiedades a estudiar: liberación de gases de fisión, fluencia y conductividad térmica. Luego, la previsión de necesidades futuras permitió seleccionar otros temas de interés como los cambios estructurales bajo irradiación, la interacción del material con combustible con el medio refrigerante, su compatibilidad con el zircaloy a temperatura elevada, el control y medición de la estequiometría y el diagrama de fases en la zona de interés.

Condiciones experimentales

Las propiedades de cada material pueden estudiarse fuera del reactor, en un laboratorio más o menos convencional, bajo irradiación en el reactor o luego de la irradiación en una celda caliente. Los problemas experimentales, las necesidades de presupuesto y aún los valores de algunas propiedades son distintos en cada caso. Se sabe que, en última instancia, los valores de mayor utilidad para el diseño son los obtenidos en las condiciones reales de utilización. Sin embargo, las experiencias de irradiación son sumamente costosas, tanto en dinero como en tiempo, e implica el montaje de una infraestructura compleja. Por eso, se ha elaborado como parte muy importante de todo el proyecto, un programa de irradiaciones de dimensiones tan pequeñas como era compatible con la utilidad de los datos que se quieren obtener.

Programa de irradiaciones

Este programa busca: a) lograr un conocimiento de los materiales que permita fijar especificaciones más económicas; b) verificar los modelos de cálculo; c) verificar la capacidad de fabricación de combustibles en lo que hace a su calidad.

Se ha programado una primera etapa de irradiaciones de cápsulas experimentales que permitan estudiar el comportamiento de las pastillas de  $UO_2$  fabricadas en el país y,

aparte, la irradiación de diversos prototipos, a escala 1:1, de combustible del reactor MZFR, reactor prototipo de 60 MWE, de la Central Nuclear de Atucha. Luego, siguiendo un esquema similar, se desarrollará una segunda etapa de irradiaciones de  $(UPu)O_2$ , con cápsulas experimentales y varios prototipos de potencia que permitan adecuar la experiencia adquirida con el  $UO_2$  a este material, para terminar con un prototipo Atucha enriquecido con plutonio.

**DESARROLLO DE TECNICAS DE FABRICACION E INGENIERIA PARA MATERIALES ALFA ACTIVOS.**

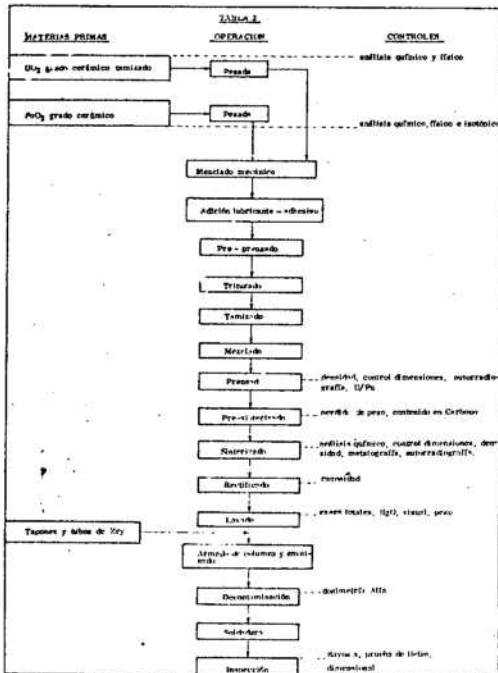
El desarrollo de la tecnología de fabricación de combustibles a base de plutonio se ha encarado teniendo en cuenta dos aspectos: a) desarrollo de la capacidad ingenieril en el diseño, construcción y operación de instalaciones para manipuleo de plutonio; b) estudio y desarrollo de las técnicas de fabricación.

a) Cuando se encara un programa donde los aspectos técnicos y económicos están fuertemente ligados, como en este caso, además de conocer los métodos de fabricación adecuados se considera importante poseer capacidad ingenieril propia de concepción y diseño de la fábrica para adaptar las instalaciones necesarias a las condiciones del medio industrial del país. En este sentido se ha diseñado y será habilitado en 1972 un laboratorio destinado a la fabricación de cápsulas y barras combustibles a base de óxido mixto de uranio-plutonio en la cual se ha logrado una amplia participación de la industria nacional.

Durante estos trabajos se ha obtenido la experiencia inicial necesaria para encarar en el futuro proyectos similares en escala industrial. Algunos aspectos que se estudian se dan en la Tabla 1.

TABLA 1	
ESTUDIOS DE DESARROLLO EN FABRICACION	ESTUDIOS EN INGENIERIA DE INSTALACION
<ul style="list-style-type: none"> <li>- <u>Proceso de fabricación</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>especificaciones</li> <li>control de calidad</li> <li>homogeneización y en control en reactores de <math>(U, Pu)O_2</math></li> <li>ensayos: métodos</li> <li>caracterización de pellets</li> <li>resista autoradiada para preensado</li> <li>ensamblado</li> <li>recuperación de residuos de fabricación</li> <li>curvas isotérmicas</li> </ul> </li> <li>- <u>Equipamiento</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>critérios de selección</li> <li>diseño de equipos especiales</li> </ul> </li> <li>- <u>Mantenimiento de planta de reciclado</u></li> <li>- <u>Dimensionamiento de planta y correcciones</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>criticidad</li> </ul> </li> <li>- <u>Costos de fabricación</u></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- <u>Método</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>localización</li> <li>diseño</li> <li>especificaciones</li> <li>circulación y empuje</li> </ul> </li> <li>- <u>Libros de cajas de guantes</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>diseño de libros y cajas de guantes</li> <li>diseño para trabajo con Pu de reciclado</li> </ul> </li> <li>- <u>Equipamiento</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>diseño de equipos especiales</li> <li>diseño de equipos generalmente seguros por criticidad</li> <li>automatización de libros de fabricación</li> </ul> </li> <li>- <u>Sistemas auxiliares</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>ventilación</li> <li>fuera matriz</li> <li>control, prevención y detección de sacudidas</li> <li>situaciones activas</li> </ul> </li> <li>- <u>Control y detección de contaminación</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>monitoreo de Pu en aire</li> <li>control de efluentes</li> <li>selección de monitores</li> </ul> </li> <li>- <u>Costos de instalación</u></li> </ul>

b) En su primera etapa están destinadas a la puesta a punto de las técnicas convencionales de fabricación para la preparación de cápsulas, barras combustibles y prototipos de demostración del tipo Zry (UPu)O<sub>2</sub> para el programa de irradiación. En la tabla 2 se muestra el diagrama de fabricación de las mismas.



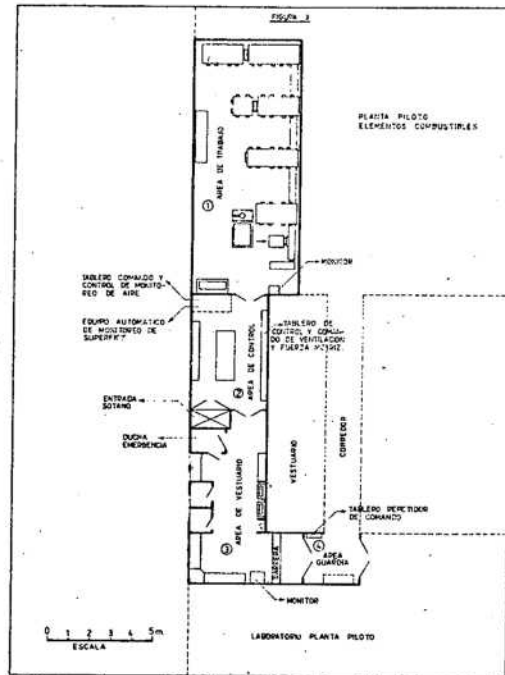
En una etapa más avanzada se encarará la fabricación desde el punto de vista económico, para lo cual se estudiará el mejoramiento y nuevos métodos y técnicas de fabricación con miras a la producción a escala industrial y a la reducción de los costos. A continuación se describe el laboratorio para Plutonio:

### Concepción

Este laboratorio es una facilidad Alfa para manipuleo de plutonio no pirofórico, con total confinamiento del mismo en cajas de guantes estancas. Las mismas, así como las distintas áreas que componen la instalación -excepto la guardia y la de ventilación- son mantenidas en depresión. Esta depresión es mayor cuanto mayor es el riesgo de contaminación del área.

### Descripción

La facilidad Alfa está situada en la Planta Piloto de Elementos Combustibles de la Gerencia de Tecnología. Consta de las siguientes áreas: trabajo, control, vestuario, guardia, sótano y ventilación. Abarca una superficie aproximada de 200 m<sup>2</sup> y la inversión total ha sido de unos u\$s 320.000. En la Fig. 3 se puede observar su distribución.



### Línea de cajas de guantes

Ha sido diseñada para el manipuleo de óxido mixto de uranio-plutonio. Consta de siete cajas de guantes interconectadas mediante un túnel para transferencia de material. Cada caja de guantes está constituida por una estructura de perfiles especiales de aluminio extrudado, soldados entre sí, con mamparas, techos y pisos del mismo material y ventanas de acrílico. Todos ellos se ajustan a la estructura mediante contramarcos sujetos con bulones y el cierre estanco se logra por medio de un burlete de goma de siliconas. Cada ventana de acrílico lleva insertadas, en cada posición de trabajo, guanteras en donde se sujetan los guantes.

El sistema de ventilación de cada caja es individual. Tiene doble filtro absoluto a la entrada y en la extracción de aire, los que se cambian desde el interior de la caja de guantes. En la extracción lleva una válvula neumática para regulación de la depresión, una válvula manual y una cañerfa metálica flexible que se conecta al sistema de ventilación. Cada caja está dotada de iluminación, tablero eléctrico, detector de incendio y un extinguidor de incendio de CO<sub>2</sub> que lo inyecta dentro de la caja a través de una tobera.

### Equipamiento

Los equipos permiten realizar todas las operaciones indicadas en el diagrama de la tabla 2. Además de los equipos necesarios para la fabricación de barras combustibles se cuenta con otros para realizar controles más inmediatos y necesarios, tales como: medidor de área específica, humedad en pastillas y en polvo, determinación de uranio en UO<sub>2</sub>, determinación de plutonio en PuO<sub>2</sub>, relación U/Pu, estequiometría por gravimetría, control dimensional, densidad, análisis metalográfico, medidor de oxígeno y humedad en gases para soldadura.

Algunos de los equipos para fabricación fueron desarrollados en colaboración con la industria local como, por ejemplo, la rectificadora sin centros. Su tamaño reducido (50x60x40 cm de altura) permite su total confinamiento en una caja de guantes. Posee todas las características de una rectificadora convencional excepto la refrigeración de las piedras y recolección del polvo que se hace por medio de una inyección y extracción de aire. Tiene una capacidad de rectificado de más de mil pastillas por hora si la carga se hace automáticamente, con una precisión de  $\pm 0,005$  mm en el diámetro.

Otro equipo desarrollado ha sido el de soldadura para barras combustibles. Puede soldar vainas, tanto de Zircaloy como de acero inoxidable y aluminio. Consta de una cámara estanca para soldadura con contrapunta para permitir soldar el primer tapón. La contrapunta y la cámara están montadas en una bancada y el movimiento de sus pasantes giratorios está sincronizado para la soldadura anular. Un purificador provee helio o argón para la soldadura con un contenido menor de 5 ppm de impurezas. Posee también un programador y controlador para los ciclos de lavado de la cámara de soldadura y para la corriente de soldadura.

Con personal del Servicio de Metalografía se desarrolló una nueva pulidora metalográfica automática.

Otros equipos son de fabricación normal pero se encargó se les efectuaron modificaciones que los hacen aptos para el trabajo con plutonio, tal el caso de la prensa hidráulica pastilladora y el horno de sinterizado.

#### Sistemas auxiliares

##### Sistema de ventilación

Está concebida para asegurar el control de la contaminación, reducir la actividad ambiental, disminuir y mantener constante la humedad relativa del aire y lograr el confort necesario para el trabajo en cajas de guantes. Permite 10 renovaciones por hora en las áreas de trabajo y control, 5 en el vestuario y 2 en el sótano, manteniendo las distintas depresiones prefijadas para cada una de ellas. Su funcionamiento es totalmente automático, lográndose ello mediante sistemas eléctricos y neumáticos. Su comando se hace indistintamente desde tres tableros, el principal en el área de control y dos auxiliares en la guardia y en la sala de ventilación.

Tanto los ventiladores de inyección como los de extracción están duplicados para facilitar el mantenimiento y cambio de filtros. En caso de falla de uno de éstos es reemplazado automáticamente por su correspondiente ventilador de reserva y se acciona una alarma.

Todo el aire de inyección pasa por filtros absolutos para disminuir la actividad Alfa natural y así lograr una mejor resolución en la dosimetría de plutonio en aire. También el aire de extracción es filtrado antes de ser expulsado a la atmósfera. Se utiliza una etapa de filtrado absoluto para las áreas de control, sótano y vestuario, dos para la de trabajo y tres para las cajas de guantes. Todos los filtros absolutos son incombustibles y resisten temperaturas de hasta 500°C.

##### Sistema de retención de líquidos activos

Los líquidos de baja actividad o de probable contaminación provenientes del área de trabajo, pileta y ducha de emergencia, son retenidos en dos tanques de acero inoxidable localizados en el sótano. Ambos están interconectados mediante un conjunto de válvulas, cañerías y bomba centrífuga. En los líquidos retenidos se dosa plutonio. Si éste está por debajo del máximo permisible se arroja a cloaca. En caso contrario se envía a la planta de tratamiento de residuos radiactivos. Un sistema electrónico permite verificar el nivel de líquido en los tanques, el que es señalado en un tablero ubicado en el área de control. Cualquier anomalía operativa es denunciada por una alarma y señalizada ópticamente.

##### Sistema de detección de incendio

Está constituido por un tablero de señalización zonal y alarma, al que llega la información de dos tipos de detectores: térmicos y de humo. Los primeros se instalan en cada una de las cajas de guantes y los segundos en los locales

##### Control radiológico

Se ha montado un estricto control radiológico compuesto por monitores de superficie y aire. Los de superficie son del tipo contador Alfa proporcional para pies, manos y ropa. Están instalados en el área de trabajo, junto a las cajas de guantes y a la salida de la facilidad Alfa.

Todo el personal debe controlar pies y manos al abandonar estas áreas y las manos toda vez que las retira de las guanteras.

Además, diariamente se toman muestras de superficie en el área de trabajo, las que se analizan automáticamente en un contador Alfa-Beta dotado de cambiador automático de muestras e inscriptor de resultados.

Para el control de plutonio en aire se desarrolló un equipo especial, consistente en un sistema de muestreo con cabezales de dosimetría diferida y alarma. La información tomada por los cabezales de alarma es recogida en un panel de control y comando que, en caso de contaminación, da aviso mediante una alarma acústica y óptica.

##### Fuerza motriz

La fuerza motriz es tomada de la red general a través de un tablero que la distribuye a los distintos sectores de la facilidad Alfa. En caso de corte de energía eléctrica existe un grupo electrógeno que automáticamente entra en operación dentro de los 30 segundos, reponiendo el consumo de los servicios esenciales.

#### DISCUSION

Los trabajos destinados a la utilización del Pu como combustible comenzaron el 1968, con el programa de desarrollo de la tecnología correspondiente. Ello incluía la instalación de laboratorios adecuados y el estudio de las técnicas de fabricación especiales necesarias para este tipo de material.

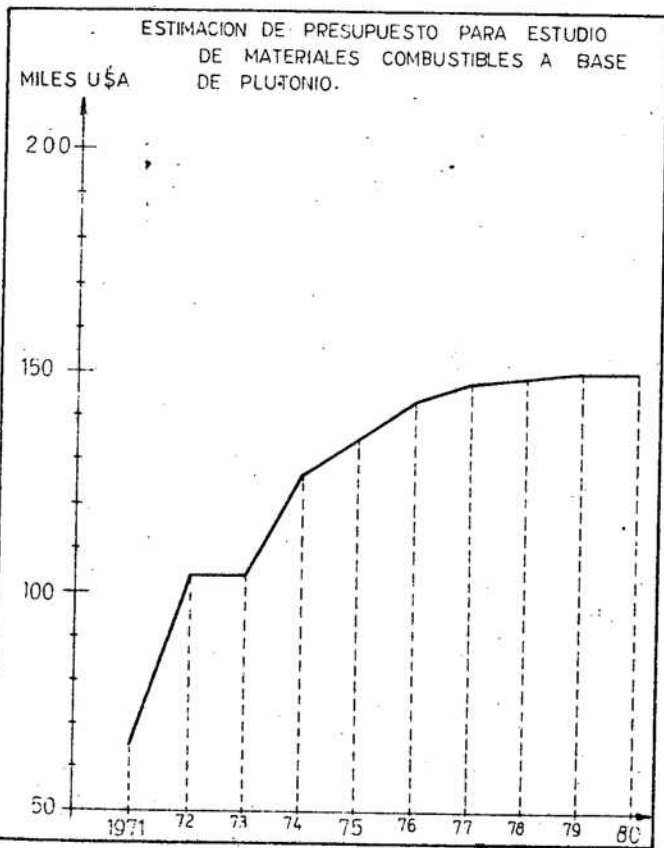
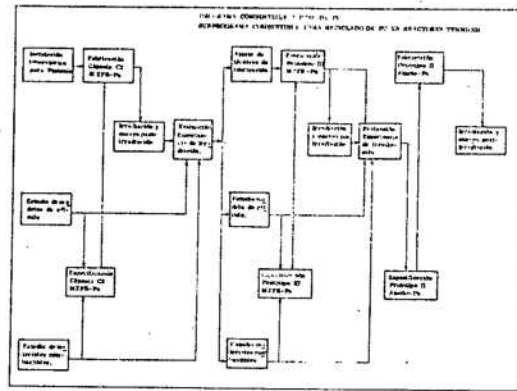
El conocimiento a adquirir se consideraba de aplicación tanto para la preparación de combustible para reactores térmicos como para rápidos, pudiéndose de esta manera

comenzar con los trabajos antes de tomar una decisión sobre el tipo de combustible a desarrollar.

Los ensayos realizados hasta la fecha en numerosas centrales nucleares para el reciclado de plutonio producido, ha dado resultados promisorios, pudiendo ahora afirmarse que se preve cercano el uso comercial de dicho material fisionable para la generación de potencia en reactores térmicos.

Por lo tanto, la orientación actual del programa tiene como objeto el reciclado de Pu en la Central Nuclear ATUCHA dentro del concepto de enriquecimiento parcial o "spiking" del núcleo.

Este trabajo muestra algunos de los aspectos del programa, en lo referente al combustible y su tecnología. En forma paralela se ha comenzado el estudio de los aspectos económicos y del ciclo de combustible.



Elemento	Características	Objetivo	Estado	Año	Financiamiento	Observaciones
Elemento 1	Enriquecimiento de uranio...	...	...	...	...	...
Elemento 2	...	...	...	...	...	...
Elemento 3	...	...	...	...	...	...
Elemento 4	...	...	...	...	...	...
Elemento 5	...	...	...	...	...	...
Elemento 6	...	...	...	...	...	...
Elemento 7	...	...	...	...	...	...
Elemento 8	...	...	...	...	...	...
Elemento 9	...	...	...	...	...	...
Elemento 10	...	...	...	...	...	...

Elemento	Características	Objetivo	Estado	Año	Financiamiento	Observaciones
Elemento 1	...	...	...	...	...	...
Elemento 2	...	...	...	...	...	...
Elemento 3	...	...	...	...	...	...
Elemento 4	...	...	...	...	...	...
Elemento 5	...	...	...	...	...	...
Elemento 6	...	...	...	...	...	...
Elemento 7	...	...	...	...	...	...
Elemento 8	...	...	...	...	...	...
Elemento 9	...	...	...	...	...	...
Elemento 10	...	...	...	...	...	...