CNEA/CN 2/135

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

AREA COMBUSTIBLES NUCLEARES

COMPORTAMIENTO BAJO IRRADIACION DE MATERIALES COMBUSTIBLES

PARTE I
PROGRAMACION DE EXPERIENCIAS

MARIO CENCIG
JORGE OSCAR MARTICORENA
RAUL OLEZZA

BUENOS AIRES
1974

CNEA/CN 2/135

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

AREA COMBUSTIBLES NUCLEARES

COMPORTAMIENTO BAJO IRRADIACION DE MATERIALES COMBUSTIBLES

PARTE I
PROGRAMACION DE EXPERIENCIAS

MARIO CENCIG
JORGE OSCAR MARTICORENA
RAUL OLEZZA

BUENOS AIRES
1974

COMPORTAMIENTO BAJO IRRADIACION DE MATERIALES COMBUSTIBLES

PARTE I
PROGRAMACION DE EXPERIENCIAS

1. INTRODUCCION

Las experiencias de irradiación de combustibles nucleares son ensayos largos y costosos, que involucran una cantidad comparativamente grande de personas, equipos y técnicas diversas. Están sujetos, además, a diversas contingencias que pueden comprometer su éxito, tanto por motivos técnicos como administrativos. Esta complejidad hace necesario disponer, para encararlos, de un esquema organizativo y una sistemática de trabajo, además de los imprescindibles conocimientos técnicos. Es por esto que proponemos aquí algunas ideas sobre el tema, desde el punto de vista de quienes están interesados en las propiedades de los materiales combustibles, en particular los óxidos de actínidos.

2. ESQUEMA GENERAL DE TRABAJO

El objetivo final de una experiencia de irradiación de combustible nuclear es la optimización de dicho combustible. Esta optimización se puede reducir, en último análisis, a términos económicos, pero para llegar a ella se debe pasar por una optimización de tipo técnico. Esta, a su vez, consistirá fundamentalmente en modificaciones que mejoren el comportamiento del combustible (por ejemplo, aumento del quemado, la potencia específica, la seguridad) o en cambios en el diseño o las técnicas de fabricación que reduzcan los costos de una o varias etapas del ciclo de combustible.

Por supuesto, una variación de diseño o técnica de fabricación deberá ser estudiada teniendo en cuenta su posible influencia sobre el comportamiento (y de ahí la necesidad de un ensayo de irradiación relacionado con ella) y viceversa.

Concretamente, entonces, la información obtenida de una experiencia de irradiación tomará, finalmente, la forma de un nuevo modelo de cálculo, un nuevo diseño o una nueva técnica de fabricación que, de una u otra manera, se reflejarán en un descenso en el costo del ciclo de combustible.

La información que proporciona una irradiación podrá buscarse desde dos puntos de vista distintos, que de ninguna manera son excluyentes: sea un estudio de hipótesis acerca de los procesos o fenómenos que ocurren en el combustible bajo irradiación, sea una evaluación del comportamiento del mismo.

Desde el primer punto de vista, la elaboración de la información obtenida llevará a la proposición de nuevos mecanismos que expliquen los procesos o fenómenos, o a la verificación de mecanismos ya propuestos; y a la comprobación de modelos de cálculo. Todo esto aparecerá, finalmente, como los nuevos modelos de cálculo a que nos referíamos más arriba.

El enfoque de evaluación de comportamiento proporcionará valoraciones de los materiales, el diseño y las técnicas de fabricación que darán lugar a las novedades ya mencionadas antes en esos campos.

El diagrama N° I resume estas ideas.

3. PROGRAMA TIPICO DE UN ENSAYO DE IRRADIACION

Un ensayo de irradiación se origina en las necesidades de uno o varios grupos de trabajo. Son, entonces, estos grupos los que, reunidos, deben fijar los objetivos de la experiencia. Esta definición de objetivos debe ser hecha en común, pues pueden haber necesidades excluyentes o incompatibles.

Una vez cumplida esta etapa, es necesario definir en qué condiciones debe realizarse la irradiación (potencia, quemado, ciclados, etc.) para poder cumplir esos objetivos. Logrado esto, hay que especificar si se van a realizar experiencias durante la irradiación, y cuáles. Llegado a este punto, se inician tres tareas paralelas: La evaluación de los distintos tipos de dispositivos que se pueden utilizar, de acuerdo a las condiciones de la irradiación y a los ensayos que se hayan decidido realizar en su transcurso; la evaluación de los posibles reactores y, eventualmente, ubicaciones en el núcleo de cada reactor, en que se pueda realizar la irradiación; y la especificación de los ensayos post-irradiación que se consideren necesarios. La realización de las dos primeras de estas tareas es, en realidad, interdependiente, ya que el lugar de la irradiación y el dispositivo pueden condicionarse mutuamente.

Al cabo de todo esto, llega el momento de hacer una reevaluación de los objetivos, en función de la factibilidad de los ensayos propuestos y las evaluaciones realizadas. Como resultado de esta reevaluación, se debe tomar la decisión de seguir adelante con el programa, si los objetivos son válidos, o volver atrás para definirlos de nuevo, si no lo son. En este último caso se deben recorrer de nuevo todas las etapas, repitiendo el ciclo las veces necesarias hasta lograr objetivos válidos. Conseguido esto, se pasa a especificar los ensayos de pre-irradiación necesarios y, como etapa siguiente, a nombrar la o las personas que van a cumplir los roles de coordinador y gestor de las tareas siguientes que empiezan por la selección definitiva del lugar y el dispositivo de irradiación, hechas al mismo tiempo por la interdependencia de que se hablaba antes. Luego de esto se inicia el trámite de gestión de los contratos necesarios y, mientras esto progresa, se realizan la especificación de los equipos que se vayan a necesitar, los diseños y fabricaciones de muestras, dispositivos o equipos no comerciales y los ensayos de pre-irradiación, todo esto seguido del informe de seguridad, que se prepara a partir de la información recogida durante estas tareas. Paralelamente al informe de seguridad, se realiza la adquisición de los equipos lici-

tados. Una vez listo el informe de seguridad, se lo evalúa y aprueba teniendo en cuenta lo estipulado en los contratos, y entonces se puede comenzar la irradiación.

Finalizada la irradiación, se llevan a cabo los ensayos de post-irradiación, seguidos de su informe, mientras, paralelamente, se prepara el informe de la irradiación propiamente dicha. Con estos dos informes, más el de seguridad y el de los ensayos de pre-irradiación, se estará en condiciones de realizar la evaluación e informe final de la experiencia, con los resultados de todo el trabajo. Ver diagrama N° 2.

4. RELACION ENTRE LOS ENSAYOS DE PRE Y POST-IRRADIACION

Se entiende por ensayos de pre y post-irradiación todas aquellas observaciones y mediciones que se realizan en el combustible o sus partes constitutivas antes y después de la irradiación.

Existen también las llamadas experiencias o ensayos en irradiación o en el reactor (o "in pile", como también se acostumbra a decir) pero que hasta el momento están menos normalizadas que las anteriores y a las que nos referimos aparte.

El objeto de los ensayos de pre-irradiación, desde el punto de vista de este trabajo, es el de proporcionar la información de referencia que permita conocer, cualitativa y cuantitativamente, los cambios producidos en el combustible por la irradiación. Por eso, los ensayos de pre-irradiación se elijen y planean en función de los que se piensan realizar sobre el combustible ya irradiado o, eventualmente, sobre el combustible en curso de irradiación. Una de las precauciones fundamentales que es necesario tener, entonces, al planear estos ensayos, es la de obtener informaciones comparables entre sí, lo cual no es inmediato ni evidente, dada la gran diferencia en las condiciones experimentales entre los ensayos de pre-irradiación, que se realizan en un laboratorio convencional, y los de post-irradiación, que se llevan a cabo en una celda caliente o en una pileta de observación y manipulación de combustible irradiado. En algunos casos (gases en la barra, densidad, examen dimensional, etc.) los ensayos de pre-irradiación también son necesarios para el control de calidad del combustible. De ser así, se debe prestar atención a que se cumpla lo dicho antes, pues no siempre un ensayo previsto para el control de calidad es compatible con el ensayo correspondiente en celda caliente. Si no existe esta compatibilidad, hay que buscarla o realizar un ensayo aparte. En este caso es válida la sentencia popular de que lo barato sale caro: una medición de pre-irradiación deficiente puede invalidar otra mucho más costosa de post-irradiación, echando a perder toda esa parte de la experiencia.

El diagrama N° 3 esquematiza estas relaciones.

4.1 Ensayo de post-irradiación

4.I.1. Quemado

Este ensayo permite conocer el número de fisiones producidas en el combustible durante la irradiación. Este dato es importante porque es una medida del rendimiento del combustible y da una base de referencia para efectuar cálculos, comparaciones y evaluaciones. Las técnicas usadas para esta determinación son el análisis radioquímico, que es una determinación absoluta, y el barrido (o scanning) gamma, que permite una determinación relativa. También es posible, a partir de los datos de funcionamiento del reactor, calcular el quemado alcanzado, pero con un margen de error mayor.

4.I.2. Gases en la barra

Esta determinación puede incluir la medición de la masa total de los gases liberados en la barra combustible durante la irradiación, el volumen libre de la barra, el análisis cualitativo y cuantitativo de las especies químicas y los isótopos que componen esos gases, y la medición, en forma localizada, de la masa y composición, química e isotópica, de los gases retenidos en el material combustible.

Los gases liberados se extraen perforando la barra y el análisis químico e isotópico se realiza usando cromatografía de gases y espectrometría de masas. Si se trata de determinaciones localizadas, se toman muestras del material combustible y se libera el gas contenido en ellas por fusión o disolución.

El conocimiento de la cantidad y composición de los gases liberados y retenidos permite conocer la presión interna que soporta la barra y cómo se retienen o liberan los gases en función de la temperatura y la estructura del material combustible. Da información también sobre la historia de la irradiación.

4.I.3. Micrografía

El examen óptico de cortes del material combustible, sea visual directo o microscópico, lleva a la obtención de macro y micrografías, por medio de técnicas metalográficas o, más propiamente hablando, ceramográficas. Estos exámenes permiten estudiar la estructura del material, el grado de densificación que ha sufrido, la distribución y forma de inclusiones, precipitados y burbujas, el hinchado, la interacción química entre las pastillas y la vaina. A partir de estas observaciones se pueden sacar conclusiones sobre la distribución de temperaturas que tuvo lugar en la barra durante la irradiación, la historia de la irradiación (potencias alcanzadas, ciclados producidos), la migración de las burbujas de gas y la retención de los gases.

La micrografía es un ensayo necesario para los estudios de dilatación y conductividad térmica, liberación de gases y cambios estructurales.

4.I.4. Estequiometría

En el caso de los óxidos, la estequiometría es la relación oxígeno-metal del material combustible. Se la puede determinar por gravimetría, por medición del parámetro de red por difracción de rayos X, o por medio de la medición de fuerza electromotriz de una pila de electrolito sólido. Se obtiene un dato de esta relación en distintos puntos de la barra, que permite investigar la influencia de la irradiación y los gradientes de temperatura sobre la redistribución del oxígeno. La estequiometría es un parámetro que está relacionado con la mayor parte de las propiedades y de los fenómenos que ocurren en el combustible, en particular la conductividad térmica, la liberación de gases, las propiedades mecánicas y los equilibrios del material combustible con la atmósfera de la vaina.

4.I.5. Densidad

La medición de la densidad del material combustible irradiado es de interés principalmente si se puede hacer en forma localizada, por medio de series radiales o longitudinales de micromuestras, que permitan seguir las variaciones de esta propiedad en esas direcciones causadas por la irradiación y los gradientes de temperatura.

La determinación se realiza por técnicas de picnometría adaptadas a las condiciones de celda caliente, y contribuye a los estudios de conductividad térmica, liberación de gases, densificación o hinchado de combustible y propiedades mecánicas.

4.I.6. Radiografías

La radiografía de la barra combustible permite conocer el estado de la barra y las pastillas antes del corte. Se puede tener información, por medio de ellas, sobre fenómenos de densificación o hinchado, fusión y defectos o fallas que se han producido durante la irradiación. Se usan técnicas radiográficas que permiten eliminar el alto fondo de radiación que tiene el combustible irradiado.

4.I.7. Autoradiografías

La autoradiografía se realiza sobre cortes del material combustible. Por medio de ella se visualiza la distribución de los productos de fisión en el combustible. Esto permite obtener información acerca de la migración de estos productos y del grado de homogeneidad de la distribución original del material fisionable. Se usa la autoradiografía sobre placa radiográfica.

bución, forma y tamaño de los poros no conectados al exterior. Toda esta información es útil para predecir la conductividad térmica, la liberación de gases, la dilatación térmica y la posibilidad de cambios estructurales cristalográficos, densificación e hinchado; y, por supuesto, para poder evaluar, en el combustible irradiado, lo que ha ocurrido respecto de estas propiedades y fenómenos. Este ensayo se relaciona directamente con las micrografías de post-irradiación.

4.2.5. Densidad

Este ensayo está directamente relacionado, por supuesto, con el de densidad en el combustible irradiado. Se usan técnicas picnométricas también en este caso. Aparte de proporcionar la densidad relativa de la pastilla respecto de la densidad teórica del UO_2, permite determinar el volumen porcentual de poros abiertos y cerrados, información que se complementa con la que se obtiene de las micrografías y que se relaciona también con la conductividad térmica y los cambios estructurales y cristalográficos bajo irradiación. El ensayo también tiene, por supuesto, relación directa con su equivalente de post-irradiación.

4.2.6. Radiografías

La radiografía de la barra permite conocer el estado de las pastillas en su interior, visualizando roturas, cascaduras, orientación del dishing, etc. Realizando las radiografías en condiciones bien normalizadas, es posible efectuar mediciones comparables de la longitud de la columna de pastillas antes y después de la irradiación. El estado de las pastillas dentro de la barra es uno de los parámetros que determinan la intensidad de la interacción entre las pastillas y la vaina. La radiografía pre-irradiación es un ensayo necesario para poder interpretar la radiografía post-irradiación.

4.2.7. Autoradiografías

Este ensayo se realiza en los casos en que el material combustible ha sido enriquecido por mezclado mecánico de un polvo rico en isótopo fisionable, lo que puede dar lugar a falta de homogeneidad en su distribución en la pastilla. Se puede usar placa radiográfica o película de nitrato de celulosa que sólo es sensible a la radiación alfa.

La homogeneidad en la distribución del material fisionable afecta el comportamiento térmico del combustible y, por ende, la liberación de gases de fisión. La autoradiografía de post-irradiación necesita de este ensayo para ser bien evaluada.

4.2.8. Examen dimensional

La medición de las dimensiones de la barra se hace por técnicas metrológicas. De esta medición se puede obtener la longitud total de la barra, la longitud entre partes, cuando sobre la barra van montadas otras piezas, los diámetros interior y exterior en distintos puntos y con distintas orientaciones, la ovalización. Es imprescindible tener estos datos para poder evaluar los que se obtienen en el examen dimensional de post-irradiación.

Las dimensiones de la barra determinan la dimensión del espacio inicial entre las pastillas y la vaina y contribuyen a determinar la posibilidad e intensidad de la interacción mecánica entre la pstilla y la vaina y, en consecuencia, la distribución de temperaturas dentro de la pastilla.

5. EXPERIENCIAS EN IRRADIACION

Como se dijo antes, las experiencias que se realizan durante la irradiación del combustible están menos normalizadas que las ya descriptas. Implican, por supuesto, algún tipo de instrumentación de la barra combustible, que generalmente se concreta en la colocación de distintos tipos de detectores. Para que estas experiencias rindan toda su utilidad, necesitan complementarse con los ensayos de pre y post-irradiación adecuados.

Las variables a medir varían, por supuesto, con el objetivo de la experiencia y, en este campo, queda mucho librado a las necesidades e imaginación de quien realiza el trabajo pero las siguientes determinaciones son más o menos frecuentes en las experiencias bajo irradiación de los materiales combustibles.

5.1. Temperatura

Se la mide con termocuplas de W-W, Re o con termómetros de gas de bulbo de W. Es una medición difícil, ya que las termocuplas suelen tener vida corta y comportamiento anormal bajo irradiación y, además, los gradientes térmicos suelen ser tan grandes que es difícil evaluar la exactitud de las medidas.

5.2. Potencia disipada

Se la mide con calorímetros, y permite calcular la integral de conductividad a la que funciona el combustible, con lo cual es posible obviar la medición de la temperatura a los efectos del diseño.

5.3. Gases liberados

Se puede medir la evolución de la presión interior de la barra por medio de transductores de presión, o instalar un sistema de barrido con un gas inerte que permita medir la cantidad y composición de los gases liberados. Si bien esta segunda opción es la que proporciona mayor información, sus dificultades experimentales son importantes.

5.4. Cambios dimensionales

El creep bajo irradiación del material combustible, por ejemplo, ha sido medido mediante dispositivos que aplican una carga y miden desplazamientos.

ESQUEMA DE LA LOGICA DE ADQUISICION Y PROCESAMIENTO DE INFORMACION

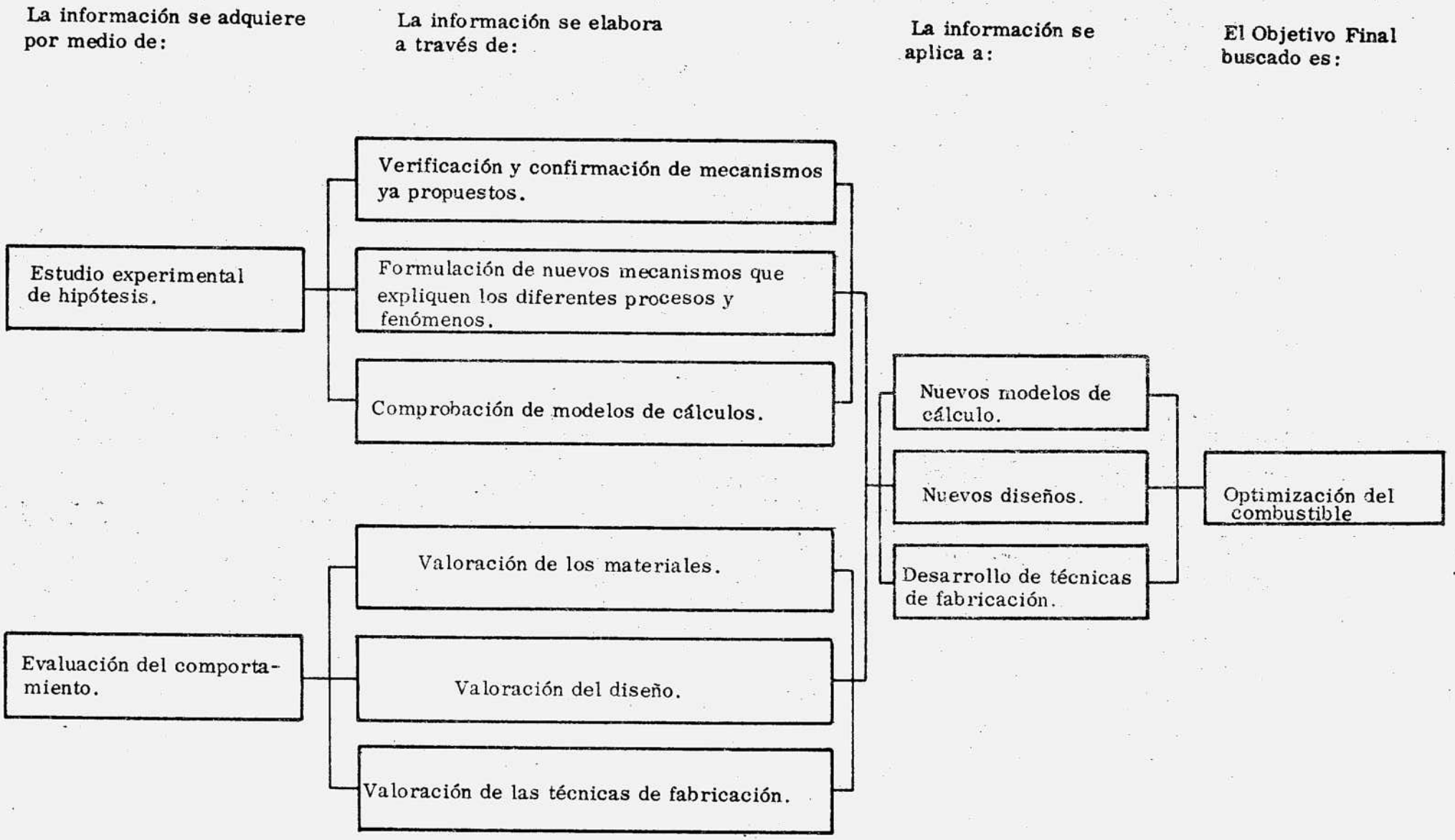
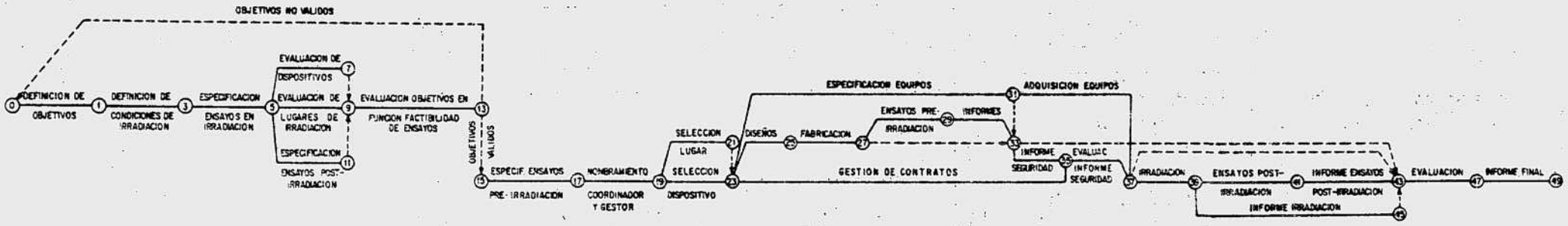


DIAGRAMA No. 1


OBJETIVOS NO VALIDOS
0
DEFINICION DE OBJETIVOS
1
DEFINICION DE CONDICIONES DE IRRADIACION
3
ESPECIFICACION ENSAYOS EN IRRADIACION
5
EVALUACION DE DISPOSITIVOS
7
EVALUACION DE LUGARES DE IRRADIACION
9
ESPECIFICACION ENSAYOS POST-IRRADIACION
11
EVALUACION OBJETIVOS EN FUNCION FACTIBILIDAD DE ENSAYOS
13
OBJETIVOS VALIDOS
15
ESPECIF. ENSAYOS PRE-IRRADIACION
17
NOMBRAMIENTO COORDINADOR Y GESTOR
19
SELECCION LUGAR
21
SELECCION DISPOSITIVO
23
DISEÑOS
25
FABRICACION
27
ESPECIFICACION EQUIPOS
31
ADQUISICION EQUIPOS
ENSAYOS PRE-IRRADIACION
29
INFORMES
33
INFORME SEGURIDAD
35
EVALUAC INFORME SEGURIDAD
GESTION DE CONTRATOS
37
IRRADIACION
39
ENSAYOS POST-IRRADIACION
41
INFORME ENSAYOS POST-IRRADIACION
43
INFORME IRRADIACION
45
EVALUACION
47
INFORME FINAL
49

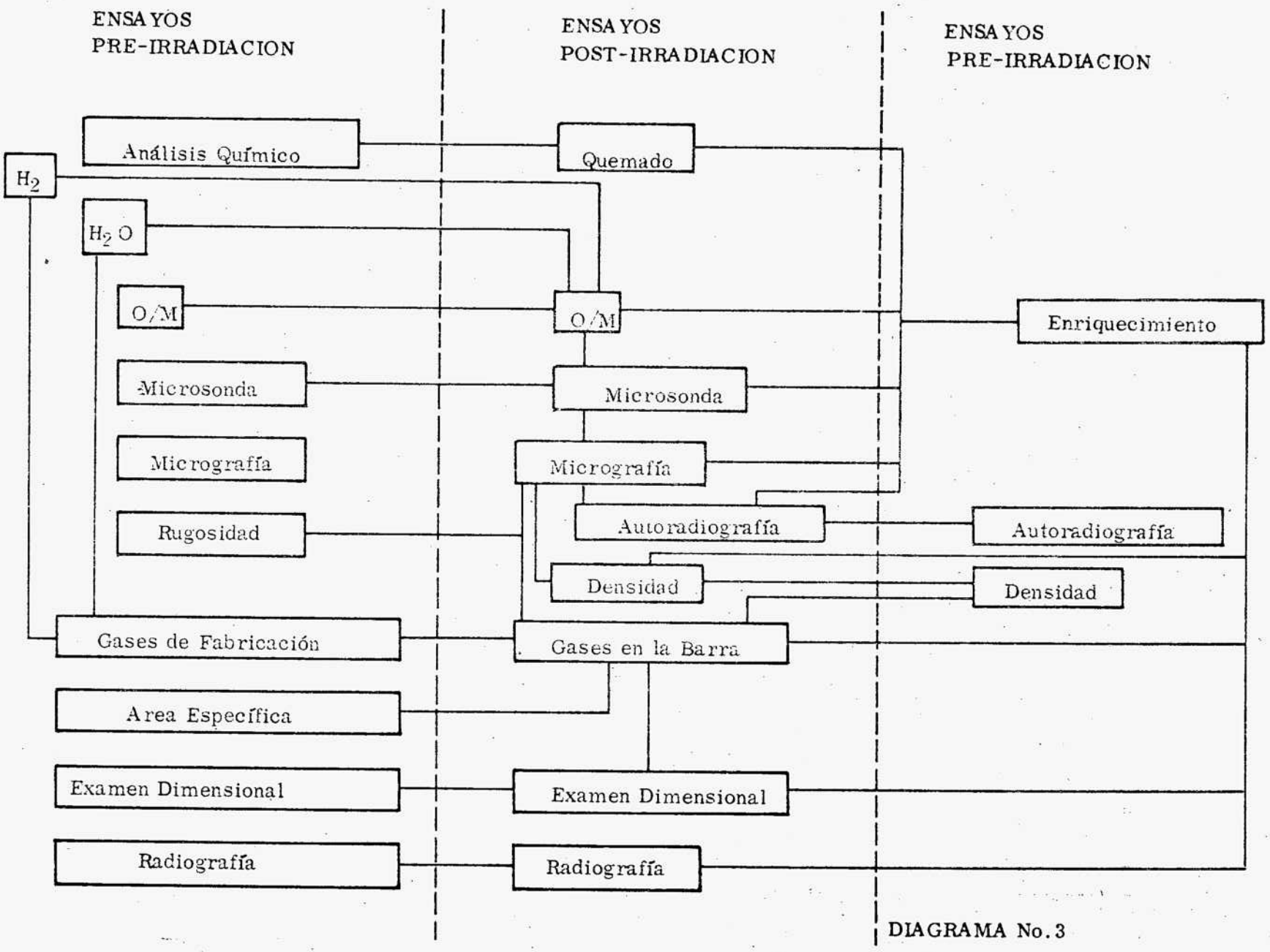


DIAGRAMA No. 3