

NO SE PRESTA

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	Nº 1963

FABRICACION DE ELEMENTOS COMBUSTIBLES
PARA REACTORES DE INVESTIGACION

Carlos Araoz
Carlos A. Martínez Vidal
Rino Morando
Oscar Wortman

Octubre 1963
Comisión Nacional de Energía Atómica
Buenos Aires
República Argentina

FABRICACION DE ELEMENTOS COMBUSTIBLES PARA REACTORES DE
INVESTIGACION EN LA GERENCIA DE TECNOLOGIA DE LA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA ARGENTINA

Por Carlos Araoz, Carlos A. Martínez Vidal, Rino Morando, Oscar Wortman. (*)

RESUMEN

Se describen brevemente los procesos de fabricación de dos tipos de elementos combustibles que serán destinados a reactores de investigación; el elemento para la 2da. carga del RA-1 y el elemento combustible para el RAEP.

1. INTRODUCCION

El elemento combustible juega una parte importante en la performance de un reactor nuclear.

La existencia de productos de fisión, la acción corrosiva del medio refrigerante, las transformaciones que sufren los materiales fisionables y fértiles por efecto de la temperatura y la irradiación imponen rígidas especificaciones para su manufactura.

Para proteger el material fisionable de los factores enumerados anteriormente se utiliza en general una cobertura o "cladding" que debe cumplir ciertas condiciones:

- a) Ser estanca, tanto para los productos de fisión como para el medio refrigerante.
- b) Estar compuesta por elementos de baja sección eficaz de captura.
- c) Ser compatible con el material del elemento combustible y con el medio refrigerante, es decir no reaccionar con ninguno de ellos a las temperaturas de operación del Reactor.
- d) Ser resistente a la corrosión.
- e) Poseer suficiente rigidez mecánica.

Pasaremos a describir en los párrafos siguientes los procesos de fabricación de los elementos combustibles actualmente en producción en la Gerencia de Tecnología de la C.N.E.A.

2. ELEMENTOS COMBUSTIBLES PARA LA 2da. CARGA DEL RA-1

2.1. Recarga para el Reactor RA-1

Al efectuar la recarga se ha decidido cambiar el tipo del elemento combustible (anteriormente Argonaut) a fin de aumentar el flujo neutrónico hasta 5×10^{12}

(*) Del Departamento de Metalurgia de la Comisión Nacional de Energía Atómica - República Argentina.

n/cm² seg. El elemento combustible, diseñado por el Departamento de Reactores de la Comisión Nacional de Energía Atómica tiene las siguientes características:

un núcleo de composición en peso:

80 % UO₂ (enriquecido al 19.71 % en U²³⁵)

20 % C (más del 50 % como C grafitico).

Dicho núcleo está contenido en un tubo de aluminio puro 99,7 %.

El refrigerante será agua desmineralizada ($\leq 0,05$ ppm. pH 6-7) con una temperatura máxima de 50°C. Los elementos deberán disipar una potencia máxima de 500W.

En la fig. 1 puede verse un esquema del elemento.

Las tolerancias son las siguientes:

Núcleo

diámetro: 7.6 mm + 0,00 mm

- 0,05 mm

longitud: 540 mm ± 2 mm

Cubertura

diámetro interior: 7.7 mm + 0,00 mm

- 0,05 mm

espesor de pared: 1 mm ± 0.1

Concentración de U²³⁵

0,55 gr/ cm³ $\pm 0,01$ gr/cm³

Inhomogeneidad permisible en la distribución de U en el núcleo: 3 %

2.2 Método de fabricación

La mezcla de UO₂ y grafito hace imposible la sinterización, ya que ésta tendría lugar a unos 1300°C y la formación de carburos de uranio comenzaría a unos 1100°C. Por lo tanto, a fin de obtener cohesión en la masa con una temperatura de cocción de alrededor de 700°C es necesario usar un ligante. La experiencia anterior (Reactor Norteamericano TREAT) (1) (2) indica el uso de resinas termoplásticas o brea con este fin, que tienen la propiedad de dejar un residuo carbonoso cuando se calcinan en atmósfera inerte. Dado que por la geometría del elemento conviene fabricarlo por extrusión, el plastificante debe actuar al mismo tiempo como lubricante. Con la experiencia acumulada por el Departamento de Reactores de la C. N. E. A. se decide por el uso de brea de alto índice de coquificación. A fin de poner a punto el método de extrusión se usó una matriz para ensayos con una mezcla en la cual se reemplaza el UO₂ por Al₂O₃, conservando la misma proporción en volumen que el elemento combustible.

Se extrudaron así barras de 5 mm de diámetro.

Los datos obtenidos permitieron diseñar la matriz (fig. 2) y el proceso siguiente;

Mezcla de 70 % UO + 10 % grafito + 20 % brea, de malla - 100 + 200.

Mezclado por partición y malaxado durante 1 hora.

Angulo de la boquilla	: 105°
Longitud porción cilíndrica de la boquilla	: 6 cm.; diámetro 7.67
Relación de extrusión	: 40
Presión extrusión	: 1-1.5 Tn/cm ²
Temperatura de la matriz	: 160°C
Temperatura a la salida (extremo boquilla)	: 85°C
Velocidad de extrusión	: 2-3 cm/minuto

2.3. Fabricación

Dado que el UO₂ enriquecido disponible ha sido usado previamente en la facilidad subcrítica, se diseñó y construyó el sistema de carga, mezcla y briqueteado de la Fig. 3.

Los elementos combustibles anteriores se descargan por vibrado en la cámara 1. Cantidades medidas de los componentes se mezclan y malaxan. Luego se cargan en las matrices para briquetear donde son compactados a 60°C y aproximadamente 100 Kgr./cm². Solo una vez en forma de briquetas el material abandona la zona a baja presión para ser extrudado. La fig. 4 muestra una foto del sistema. Las briquetas se cargan en forma semi-continua para su extrusión lo que acelera el proceso.

En la fig. 5 pueden verse la matriz y la prensa usados en la extrusión. Las varillas se extrudan verticalmente. La temperatura en la boquilla, sumamente importante se registra.

Las varillas son frenteadas a dimensión en el dispositivo de la fig. 6.

La fig. 7 muestra el núcleo en dimensiones y la briqueta original. Las varillas son degasadas en grupo de a 10, cargadas en un perfil de acero, en atmósfera inerte. La máxima evolución de gases ocurre a unos 120°C. La temperatura se lleva lentamente a 600°C.

Luego son degasadas en vacío a esa temperatura y cargadas en la cubierta de aluminio. La fig. 8 muestra dicho tubo de aluminio con los tapones para efectuar la soldadura así como el elemento terminado. La separación del aluminio y el núcleo se reduce por swaging, al mismo tiempo que se logra la tolerancia exterior. El elemento combustible es posteriormente anodizado.

2.4. Sellado de los elementos combustibles.

El método utilizado para sellar las tapas al elemento combustible, es soldar bajo gas inerte con electrodo de tungsteno (TIG), usando corriente alternada e inyección de alta frecuencia.

El equipo utilizado ha sido desarrollado en la C. N. E. A. (3) y permite la automatización según un cierto programa de las distintas variables que entran en el proceso.

Este equipo está compuesto de cuatro partes fundamentales:

- 1) Generador
- 2) Posicionador
- 3) Panel de secuencia

4) Eliminador de cráter.

Generador: Es un equipo convencional tipo transformador-rectificador con oscilador de alta frecuencia para estabilizar el arco.

Posicionador: Permite la rotación del elemento combustible bajo la pistola, con velocidad variable.

Panel de secuencia: Comanda el flujo de gas, agua, y controla según un cierto programa el comienzo de la soldadura, la corriente y velocidad del posicionador.

Eliminador de cráter: Controla la reducción paulatina de la corriente al finalizar la operación con el objeto de eliminar el cráter.

El ciclo de soldadura es el siguiente:

- 1) Apertura de la válvula de gas inerte para purgar el conducto.
- 2) Comienzo de la soldadura.
- 3) Rotación del posicionador luego de un cierto retardo, después de comenzada la soldadura.
- 4) Aumento de la velocidad del posicionador en 5 etapas sucesivas.
- 5) Reducción de la corriente a fin de alimentar el cráter.
- 6) Retardo del cierre de gas y finalización de la operación.

En la fig. 9 se muestra el aspecto general del equipo.

2.4.1. Diseño de junta

Como ha sido puntualizado en trabajos anteriores, el diseño de junta en el sellado de elementos combustibles de aluminio y sus aleaciones es de fundamental importancia (4) (5).

En el caso del elemento combustible RA-1 (2da. carga) una exhaustiva investigación se llevó a cabo a fin de evaluar la influencia de:

- 1) Forma y dimensiones de la tapa.
- 2) Corriente de soldadura.

Luego de distintos ensayos se adoptó la tapa cuya forma y dimensiones se muestran en fig. 10.

La soldadura obtenida se puede observar en la microfotografía de la fig. 11.

2.4.2. Condiciones de soldadura

La pistola se coloca vertical y el elemento es hecho rotar en el posicionador en forma horizontal.

La segunda tapa, que cierra el elemento por completo tiene un orificio para permitir la salida de los gases y evitar la posibilidad de sopladuras (6).

Este orificio se cierra posteriormente con un punto de soldadura manual.

Al soldar ambas tapas se rodea la zona a soldar con una coquilla de cobre con el objeto de limitar en lo posible la zona afectada por el calor fig. 12.

Con las dimensiones de tapa y tubo de la fig. 4 la corriente que se utilizó es

de 95 A.

Todas las condiciones de soldadura se sintetizan en el cuadro siguiente:

CUADRO I

Período de purga	: 15 seg.
Período de precalentamiento	: 8 seg.
Caudal de argón	: 14 litros/min.
Tensión a circuito abierto	: 60 voltios
Proyección del electrodo	: 6 mm
Longitud del arco	: 1,5 mm
Velocidad inicial del posicionador	: 0,12 r. p. m.

3. FABRICACION DE ELEMENTOS COMBUSTIBLES PARA EL REACTOR ARGENTINO DE EXPERIMENTACION Y PRODUCCION DE RADIOISOTOPOS(RAEP)

3.1. Selección del elemento para el RAEP

La Comisión Nacional de Energía Atómica decidió la construcción de un reactor experimental y de producción de radioisótopos, cuyas características principales son: potencia inicial de 1 a 3 MW calóricos, elevables a 5 MW y un flujo neutrónico de 10^{13} n/cm² seg.

El estudio preliminar hizo que se aconsejara, fundamentalmente por razones de refrigeración, el uso de elementos combustibles planos tipo MTR, en lugar de los de geometría cilíndrica de UO₂, que ya habían sido desarrollados por el Departamento de Metalurgia de la C. N. E. A. Se llegó así a la conveniencia de usar elementos de fase fisionable dispersa en matriz de aluminio. Del análisis de las posibles fases fisionables surgió la utilización de U₃O₈ en polvo de aluminio en el caso de obtener material enriquecido al 20 % y aleación Al-U si el enriquecimiento era el 90 % (que fué el obtenido finalmente).

El cálculo del núcleo del reactor indicó la conveniencia de utilizar aproximadamente 8 gr. de U²³⁵ por chapa. Para una chapa cuyo núcleo medía 615 x 60 x 0.5 mm, se tenía una aleación de aluminio con 15 % en peso de uranio, que ubicada en el diagrama de equilibrio, dió una aleación ligeramente hipereutéctica, que funde a los 690°C y formada por cristales de UAl₄ en matriz de aluminio.

El material de envoltura (cladding), dadas las características de trabajo del reactor, es aluminio 1100 de un espesor de aproximadamente 0.4 mm.

3.2. Obtención del núcleo fisionable

3.2.1. Obtención de la aleación aluminio-uranio

Trabajos efectuados en la Gerencia de Tecnología por Boschi y Zappi permitieron desarrollar una patente sobre reducción directa del hexafluoruro de uranio a aleación uranio-aluminio, con un rendimiento de: 96 al 99 %. Se aplicó dicho proceso obteniéndose una aleación con 20 a 22 % en peso de uranio que se refundió para

llevarla al tenor elegido.

Fueron estudiadas técnicas de refusión en alto vacío y en aire, y con sistemas de colada por el fondo del crisol y por volcado. La elección final recayó en la refusión en aire con sistema de colada por volcado. Los lingotes son de $320 \times 130 \times 35$ mm (Fig. 13 a), la lingotera tiene un canal de alimentación lateral, embudo de colada y mazarota para evitar el rechupe, como se puede apreciar en la foto.

Con el fin de obtener una buena estructura de fundición, superficie que se pudiera laminar sin cepillado o fresado previo, eliminar la porosidad y el rechupe y disminuir al máximo la segregación, se estudiaron las condiciones óptimas de colada, que indicaron: temperatura de colada 750°C , temperatura de lingotera de fundición de hierro 100°C y degasado con nitrógeno durante 3 minutos.

De los lingotes se hizo un muestreo y se analizó la composición por métodos químicos y de análisis por activación a fin de determinar la segregación. Igualmente se sacó gammagrafía para observar efectos de porosidad o rechupe.

3.2.2. Laminación de la aleación Al-U

El lingote se corta en pedazos de aproximadamente 65 mm de ancho. Estos pedazos de $65 \times 130 \times 35$ mm se calientan durante una hora a 580°C y son luego laminados en caliente. Se lamina con una reducción de 25 % por pasada y se recalienta entre pasadas 10 min. a la misma temperatura. En ocho pasadas se lleva a 3,5 mm, laminándose luego en frío hasta 3,02 mm enderezando finalmente las cintas en la enderezadora a rodillos. La fig. 13 b muestra dos cintas terminadas.

3.3 Preparado del conjunto

Se eligió el método de laminación en marco (picture frame). En una matriz de corte se punzonan los núcleos de las cintas laminadas (fig. 13 c) cuyas dimensiones son: $110 \times 58 \times 3$ mm. En guillotina se cortan los marcos (de 3 mm de espesor) y las tapas (de 2,5 mm de espesor) de chapas de aluminio 1100 y cuyas medidas son: 180×120 mm. Los marcos se punzonan con la misma matriz de los núcleos. La fig. 14 a muestra el despiece de los mismos.

3.4. Unión y laminado del conjunto

Fueron estudiados y puestos a punto diferentes métodos de unión:

- a) Remachado del conjunto y colaminado en caliente,
- b) soldadura de los bordes bajo argón y colaminado en caliente,
- c) soldadura por autéctico silicio-aluminio y
- d) sellado por soldadura a presión en frío y colaminado en caliente.

Si bien el método c) daba uniones perfectas desde el punto de vista metalúrgico, dadas las características y las bajas exigencias del reactor, se usó el método d), mucho más sencillo y cómodo de efectuar.

Todo el material una vez recocido a 450°C durante 20 min. en horno tipo ciclón, se decapa en OHNa y en NO_3H , lavándose luego en alcohol y secándose en infrarrojo. La fig. 15 muestra el equipo utilizado.

Luego se cepillan las caras internas de las tapas y el marco y el núcleo de ambos lados en una cepilladora cerrada en dry-box y con presión de cepillado regulable.

Aprovechando los trabajos realizados en la Gerencia de Tecnología por Cusminsky y Martínez Vidal, se aplicó la soldadura a presión en frío, que consiste en una indentación alrededor del núcleo con una deformación del 45 %, como se puede apreciar en la fig. 14 b. Esto permitió que el posterior calentamiento para la colaminación en caliente, al estar sellado el conjunto, no forme óxidos en la interfase, con la consiguiente falta de unión.

La unión entre las tapas y el marco y núcleo, que asegura la estanquedad del elemento combustible, es obtenida por colaminación en caliente. El conjunto ya sellado se calienta durante 20 min. a 600°C y se lamina con una reducción inicial del 20 %.

Desde el espesor inicial de 8 mm, se lleva hasta 2,5 mm por sucesivas pasadas de 15 % y con recalentamientos intermedios de 5 a 10 min. a la misma temperatura (fig. 14 c). Durante esta etapa del proceso, hubo que ajustar la secuencia de laminación, a fin de corregir el efecto de geometría de punta que muestra la fig. 16 a y b, y se llegó finalmente a obtener los perfiles que indican la fig. 16 c.

Desde los 2,5 mm se prosigue laminando en frío con 10 % por pasada hasta 1,75 mm, en que se efectúa el ensayo de ampolladura (blister test).

El ensayo consiste en calentar a 550°C durante una hora cada chapa. Defectos de unión en la interfase producen ampollas en la superficie, que son fácilmente detectables. La fig. 17 a muestra un pliegue del material de envoltura debido a un fuerte gradiente de temperatura, el que al efectuar el ensayo de ampolladura, fué detectado (fig. 18 c) y obligó a rechazar la chapa.

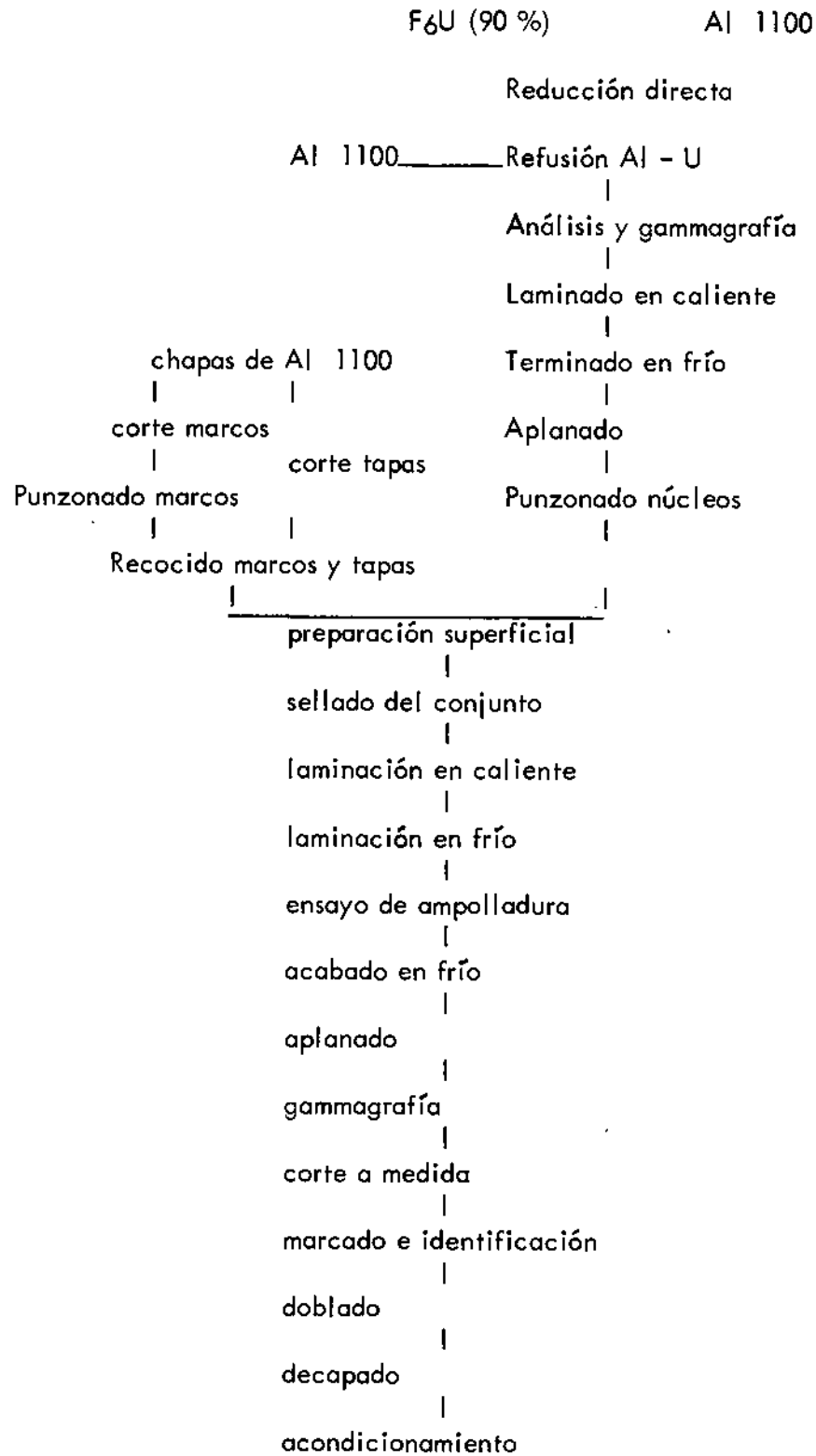
Luego de este ensayo, se prosigue laminando en frío un 25 % más, hasta 1,31 mm de espesor y con 10 % por pasada. Estas chapas son finalmente aplanadas en la enderezadora a rodillos.

La fig. 19 muestra un aspecto de la planta de fabricación de elementos combustibles, en que puede apreciarse la laminadora de alta precisión, la enderezadora a rodillos y parte de las muflas.

3.5. Acabado de las placas

Una vez aplanadas, se toma gammagrafía de los extremos (fig. 16 c) a fin de ubicar exactamente el núcleo. Se dibuja el perfil obtenido sobre la placa, verificando las tolerancias de especificaciones y se corta a medida. La fig. 18 b es una placa marcada y lista para cortar. Luego se doblan en el sentido del ancho a 140 mm de radio en una matriz y finalmente se repite el proceso de decapado, previo al numerado y acondicionamiento en bolsas de polietileno.

La fig. 18 a muestra una placa terminada y curvada y la fig. 17 b muestra cortes a diferentes alturas para verificar el espesor de núcleo y de material de envoltura, pudiendo apreciarse la perfecta distribución de los mismos.

3.6. Proceso de fabricación

3.7. Especificaciones finales

a) Núcleo:

$7,8 \pm 0,3$ gr. de U₂₃₅ por chapa

aleación Al-U al 15 % en peso de U

homogeneidad por chapa 5 %

diferencia entre chapas 4 %

medidas del núcleo:

largo : 615 ± 10 mm

ancho : $60 \pm 1,3$ mm

espesor : $0,52 \pm 0,02$ mm

b) Envoltura:

material ; aluminio 1100

espesor : 0,40 mm

c) Medidas externas:

largo : $655 \pm 1,5$ mm

ancho : $72 \pm 0,5$ mm

espesor : $1,30 \pm 0,16$ mm

REFERENCIAS

- 1) R. C. Lied - J. H. HANDWERK: Fuel development for the TREAT Reactor. ANL - 5960.
- 2) J. H. HANDWERK, R. C. LIED: Manufacture of the Urania-Graphite fuel matrix for TREAT. ANL - 5963.
- 3) OSCAR WORTMAN: Una máquina automática para soldar elementos combustibles cilíndricos. Informe CNEA a publicarse.
- 4) K. HANNERZ, R. LINDBLOD and A. W. MAGNUSSEN: Investigations of some Aluminium Alloys as Cladding Materials in water cooled Reactor for District Heating and Process Steam Generation. Fuel Elements Fabrication IAEA Viena, 1960.
- 5) P. THOME and C. BRIDOUX: Soudage de Bouchans et Graines en Alliages de Magnesium. Fuel Elements Fabrication IAEA Viena, 1960.
- 6) J. VAGI: Studies of Methods for sealing Ends of Reactor Fuel Elements for PWR. The Welding Journal, october 1960, pag. 4435.
- 7) L. HOWE: The metallurgy of reactor fuels - 1ra. Conferencia Int. de Ginebra, (1955) R/825.
- 8) C. WEBER and H. HIRSCH: Dispersion type fuel elements - 1ra. Conferencia Int. de Ginebra (1955) R/561.
- 9) H. SALLER: Preparation, properties and cladding of aluminium-uranium alloys - 1ra. Conferencia Int. de Ginebra (1955) R/562.
- 10) J. CUNNINGHAM and E. BOYLE: MTR type fuel elements - 1ra. Conferencia Int. de Ginebra (1955) R/ 953.
- 11) H. BERGUA, R. FRIDDLE and J. BAIRD: Fabrication of a cast clad dispersion type fuel element - Nuclear Congress (1958) Los Angeles.
- 12) B. KOPELMAN: Recent Developments in dispersion type fuel elements. Fuel Element Conf. Paris (1957) TID 7546.

- 13) J. CUNNINGHAM et al. Fuel dispersions in aluminium-base elements for reactor research - Fuel Element Conf. Paris (1957) TID 7546
- 14) R. NOLAND and D. WALKER: Bonding of aluminium with elemental silicon ANL-FGF 137 (1958).
- 15) W. THURBER and R. BEAVER: Segregation in uranium-aluminium alloys - ORNL 2476 (1958).
- 16) W. THURBER and R. BEAVER: Development of silicon-modified 48 Wt. % U-Al alloys for aluminium plate-type fuel elements - ORNL 2602 (1959).
- 17) R. SALLEY and W. BURT: Casting and fabrication of core material for Argonne Low Power Reactor fuel elements - ANL 5950 (1959).
- 18) J. JONCKHEERE et al.: Gainage par coulée et fabrication de plaques triplex à base d'un alliage Al-U - Fuel Element Fabr. Symp. Viena (1960).
- 19) M. Mc PHEE et al.: The manufacture of MTR fuel elements in the U. K. - Fuel Element Fabr. Symp. Viena (1960).
- 20) American Nuclear Society: Proposed standard for plate-type uranium fuel elements. Nuclear News (1961) p. 34.
- 21) C. MATZ: Fabrication of fuel elements - IAEA Review Series N° 25, Viena (1962).
- 22) G. CUSMINSKY y C. MARTINEZ VIDAL: Colaminación Al-Al - Informe CNEA (1962).
- 23) Comisión Nacional de Energía Atómica: Procedimiento para producir aleación Al-U a partir de F₂U. Patente N° 130.518 (1963).

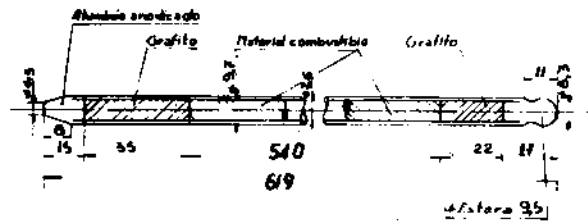


Fig. 1. Combustible RA-1, 2da. carga

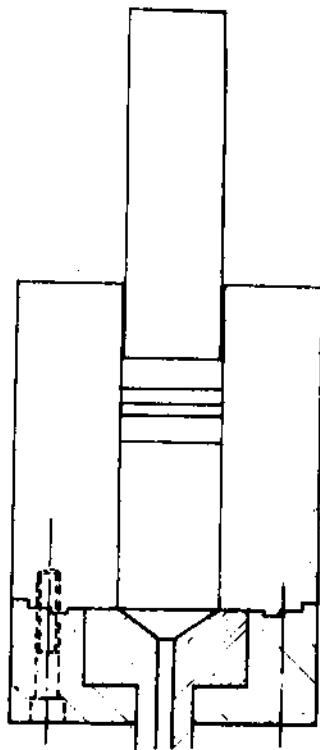


Fig. 2. Esquema de la matriz de extrusión.

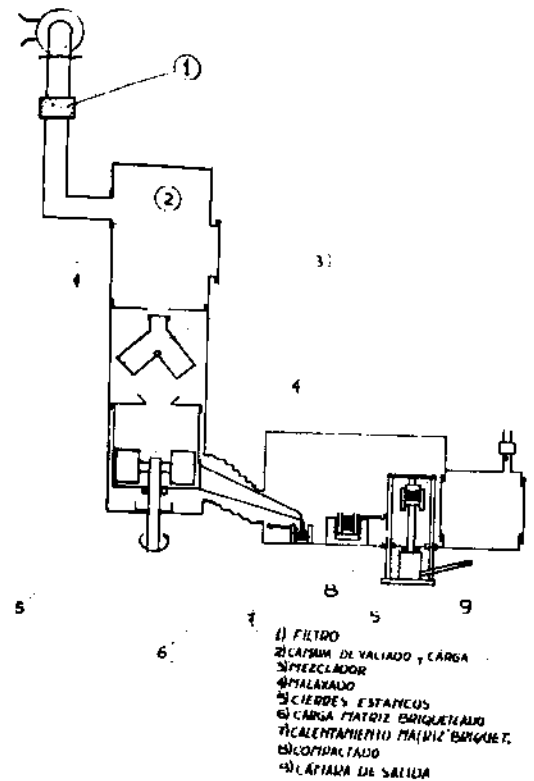


Fig. 3. Esquema de fabricación.



Fig. 4. Equipo de mezcla y briqueteado

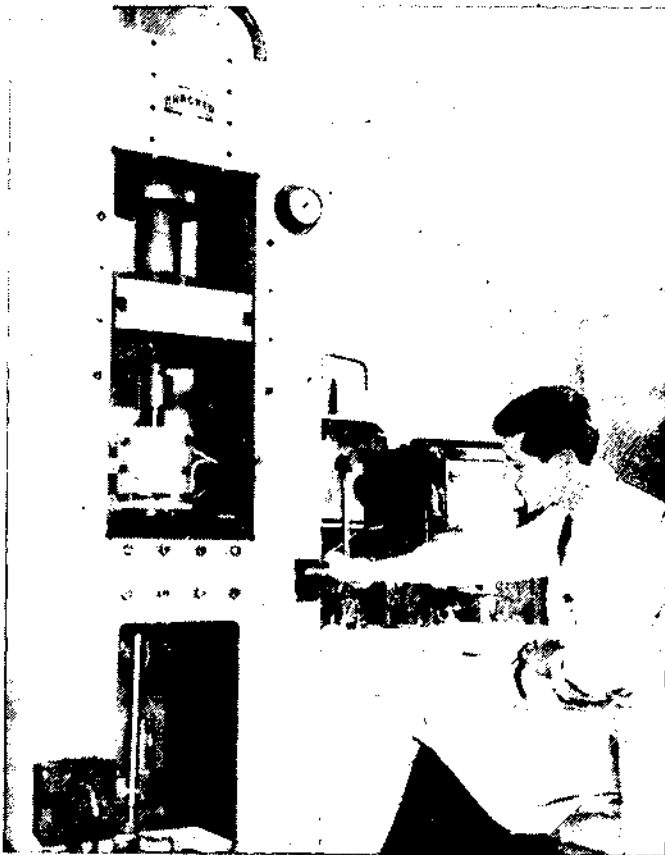


Fig. 5. Prensa utilizada en la extrusión.

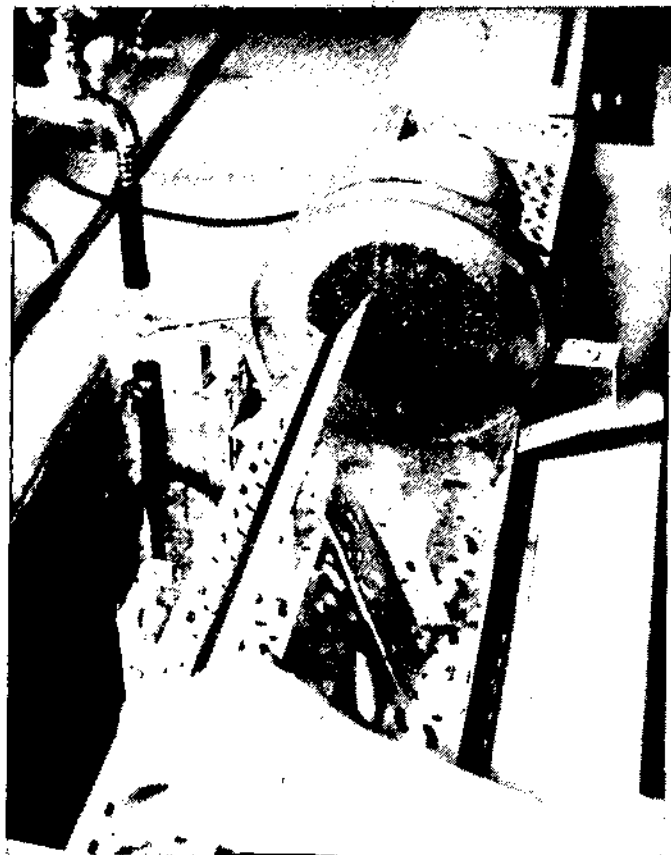


Fig. 6. Dispositivo de frentado de los núcleos.

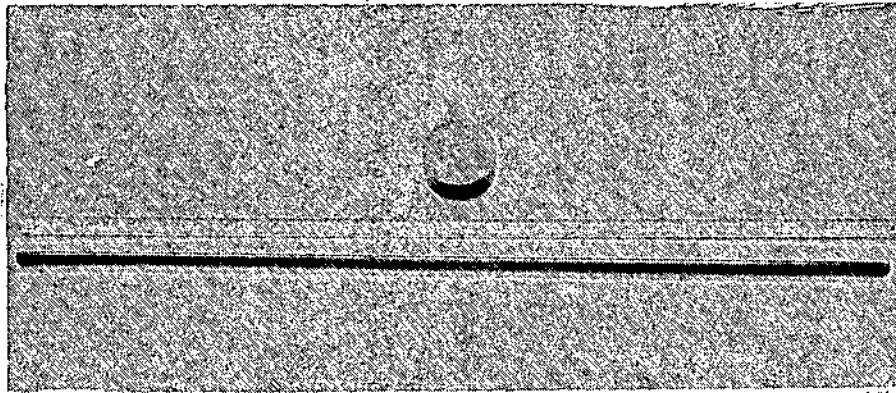


Fig. 7. Núcleo y briqueta

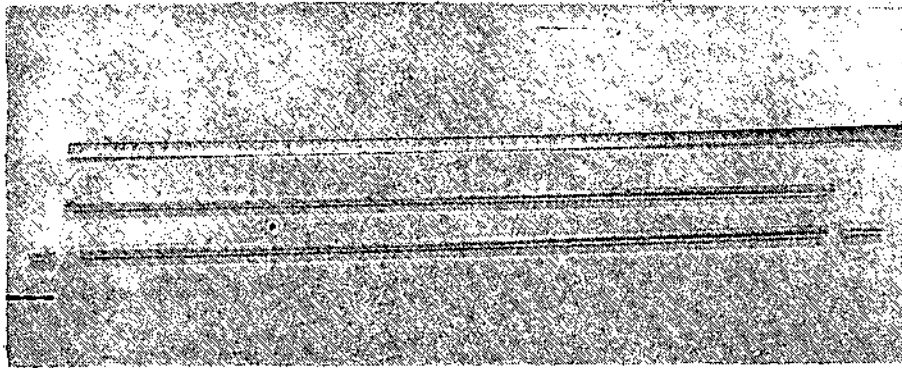


Fig. 8. "Cladding" y elemento terminado.

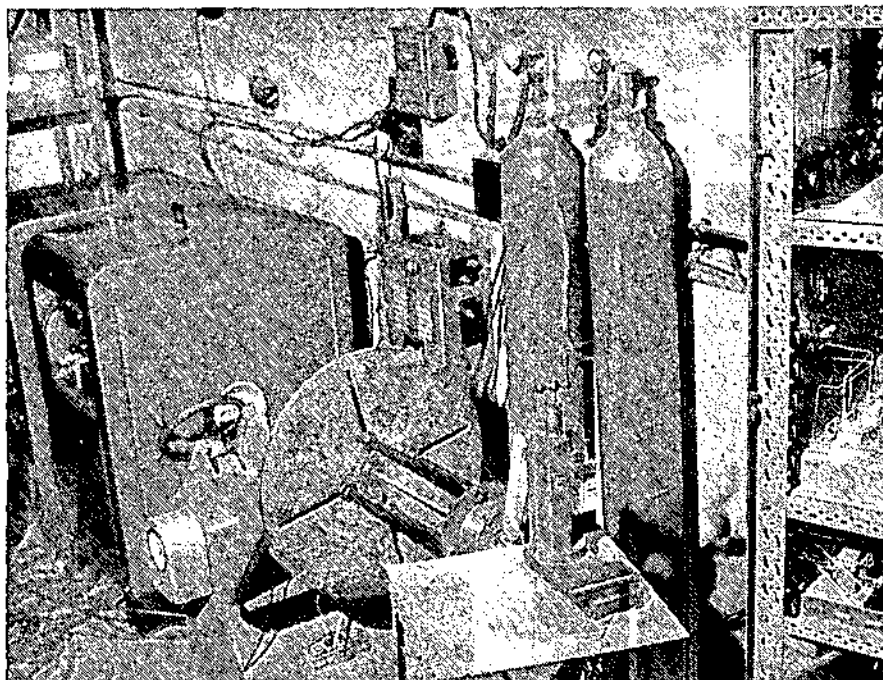


Fig. 9. Aspecto general del equipo de soldadura

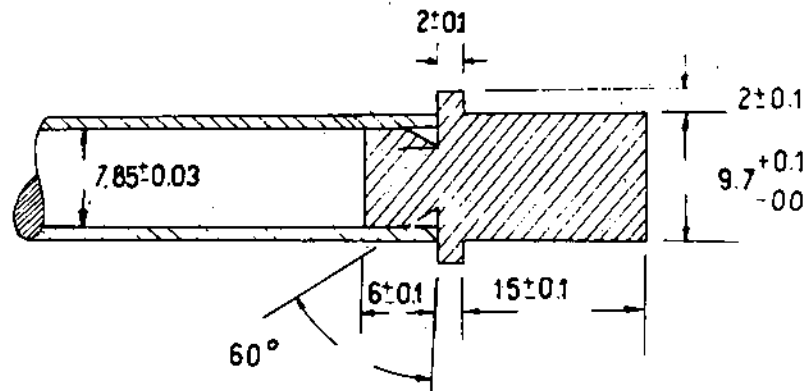


Fig. 10. Tapa del elemento combustible.



Fig. 11. Aspecto macrográfico de la soldadura.

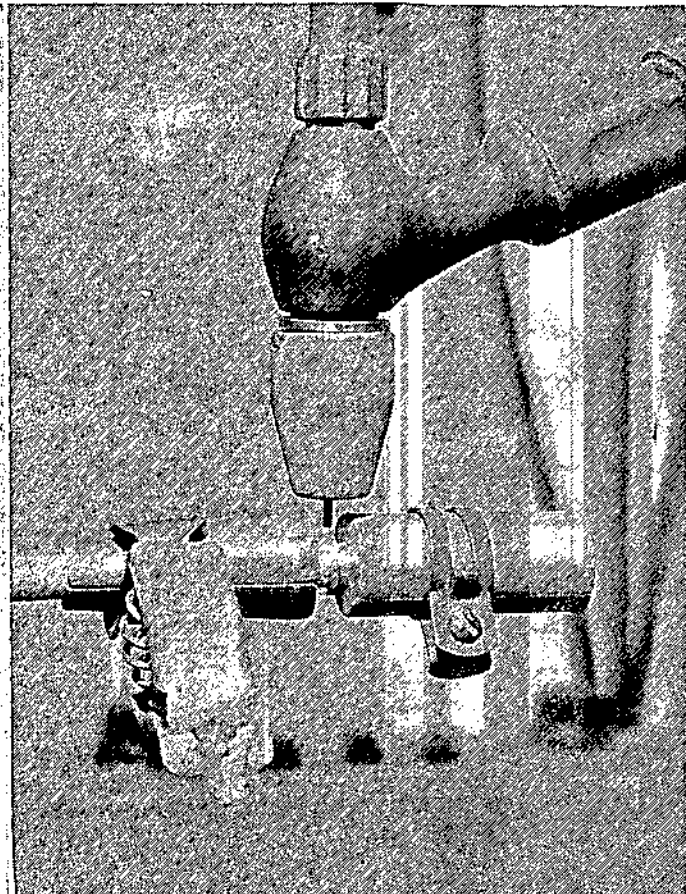


Fig. 12. Coquilla de cobre para limitar la zona afectada por el calor.

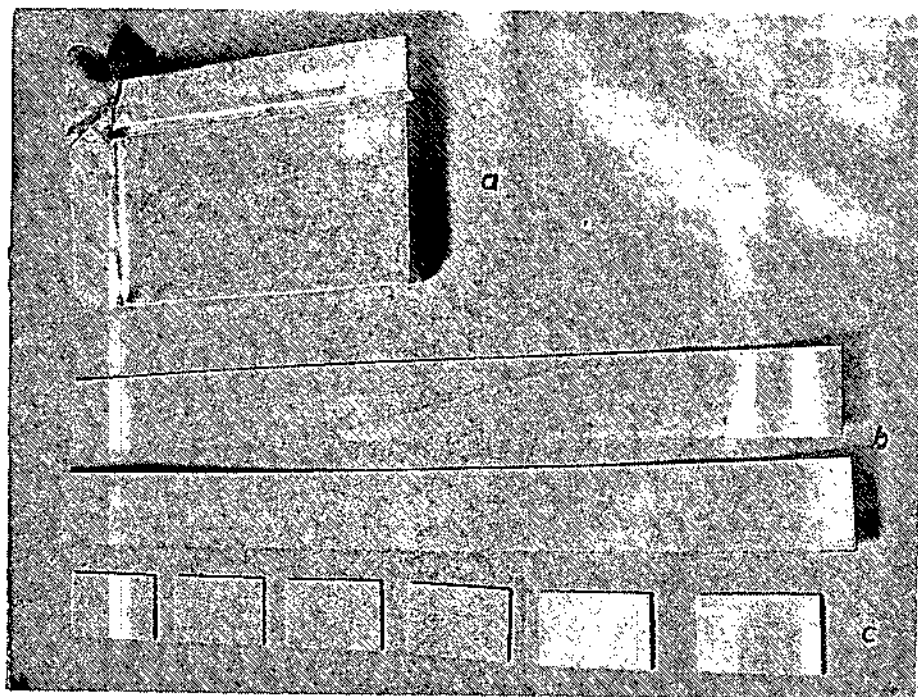


Fig. 13. Lingote, chapas y núcleos de aleación aluminio-uranio.

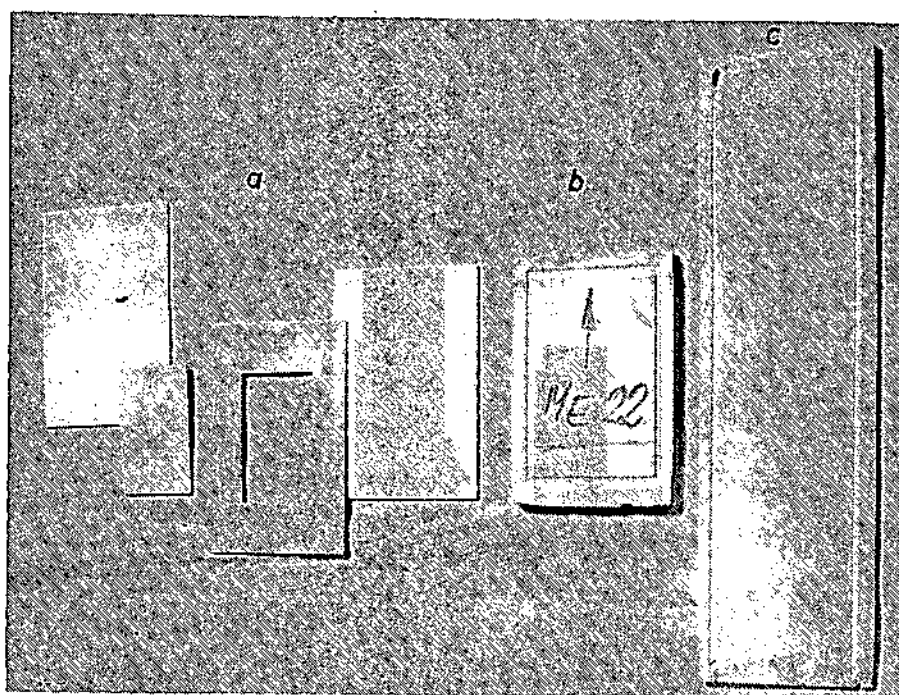


Fig. 14. Despiece del conjunto a laminar, conjunto listo para ser laminado, conjunto laminado.

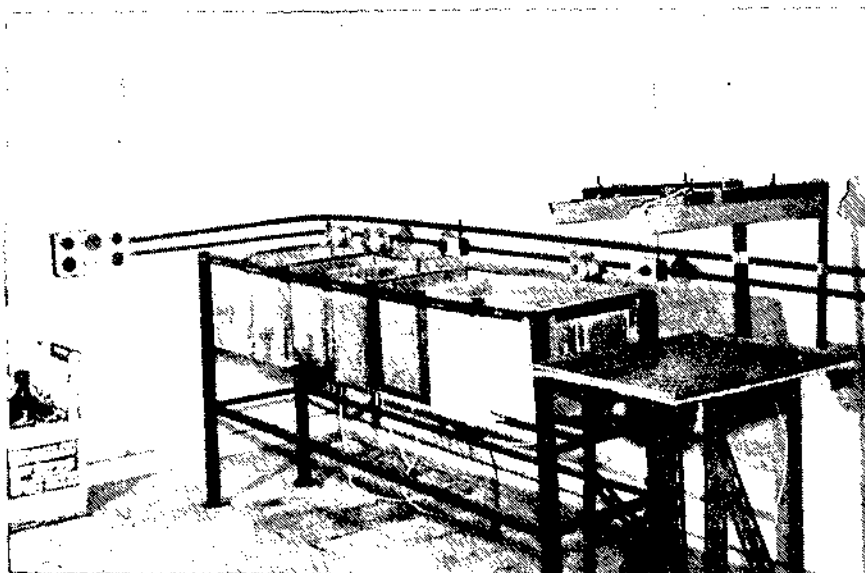


Fig. 15. Equipo de decapado.

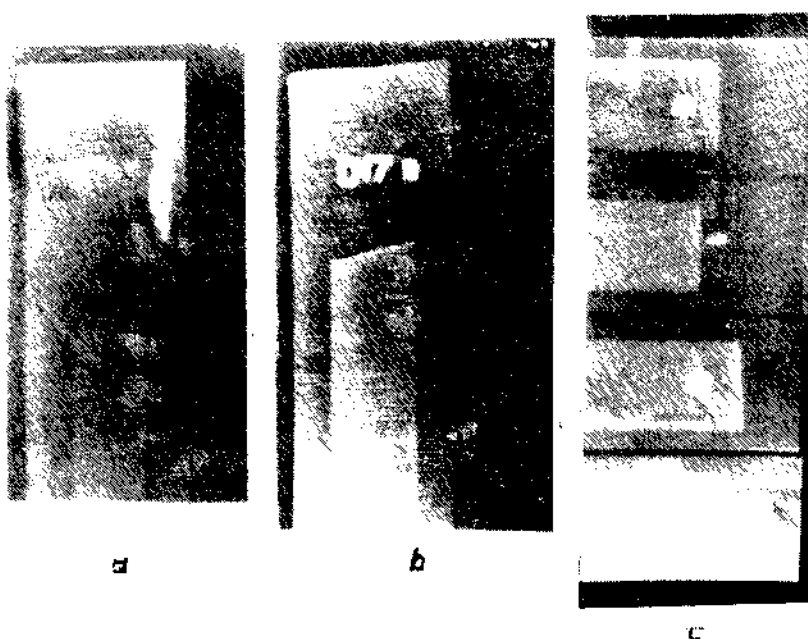


Fig. 16. Radiografías de los extremos de núcleos.

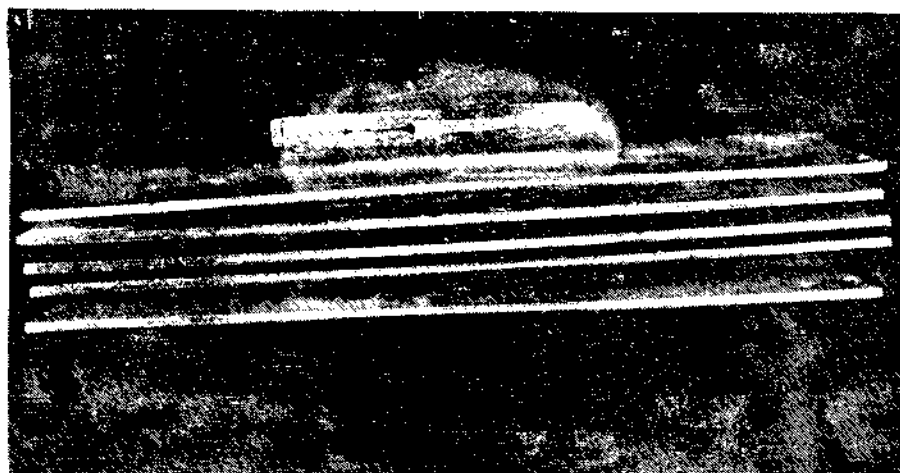


Fig. 17. Cortes transversales de un elemento en distintas etapas de fabricación.

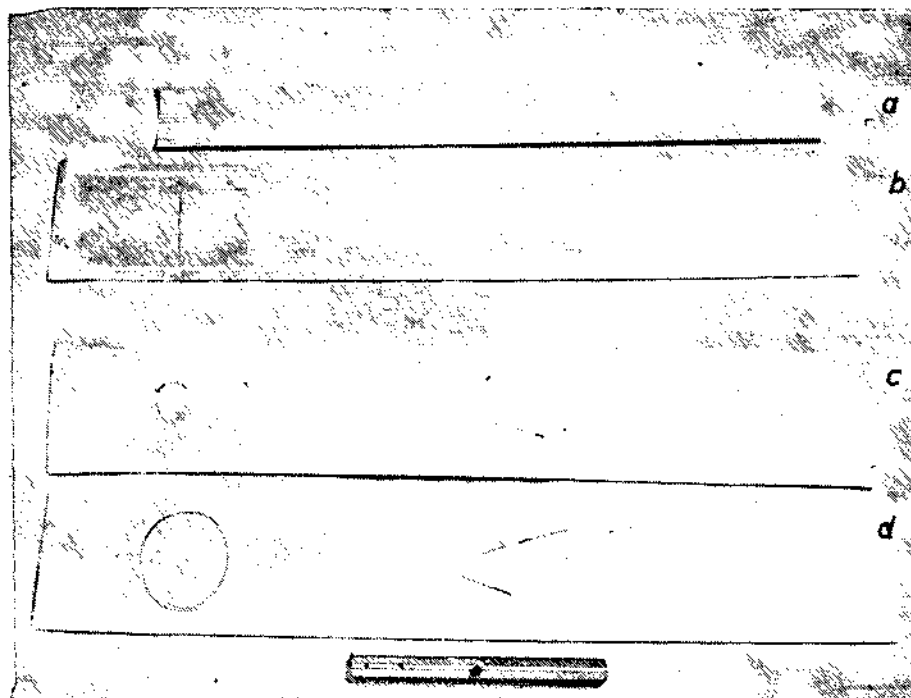


Fig. 18. Elemento terminado.
Elemento listo para cortar y ensayo
de ampollado.



Fig. 19. Aspecto general de la planta de laminación.