

Obtención de núcleos con alta concentración de uranio para combustibles nucleares tipo placa (MTR) por dispersión de aluminuros de uranio en aluminio.

R. A. MORANDO, H. RAFFAELI, D. E. BALZARETTI *

INTRODUCCION

Debido a las restricciones impuestas por los países proveedores de uranio de alto enriquecimiento, fue necesario desarrollar elementos combustibles con uranio enriquecido al 20 % de U^{235} .

Hasta el presente era utilizado uranio enriquecido al 90 % de U^{235} y el método de fabricación consistía en fundir una aleación Al-U de 15 a 20 % de U en peso que luego era laminada hasta las dimensiones requeridas.

Para un enriquecimiento de 20 % de U^{235} el método de fabricación mencionado no puede ser utilizado, ya que el contenido del elemento uranio que debe tener el núcleo del elemento combusti-

ble es de alrededor de 54 % en peso. Una aleación Al-U con este contenido de U presenta problemas de segregación además de la imposibilidad de ser laminada debido a su fragilidad y dureza.

Se considera entonces que el camino más adecuado para obtener núcleos con alto contenido de U es utilizar técnicas de pulvimetalurgia, en base a una fase portadora de U y otra dúctil, para fabricar un compacto que pueda ser laminado (1) (2).

Entre las distintas fases portadoras de U posibles se encuentran óxidos (U_3O_8), aluminuros (UAl_x), siliciuros (U_xSi_x), etc.

En el presente trabajo se analizan como fase portadora de U a los intermetálicos formados por Al y U (UAl_x). Como fase metálica dúctil para obtener un compacto laminable se considera adecuado utilizar aluminio en polvo por su alta conductibilidad tér-

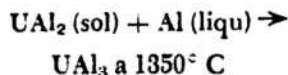
* Gerencia de Desarrollo, Departamento de Materiales, Comisión Nacional de Energía Atómica.

mica y baja absorción neutrónica.

El intermetálico ideal, en cuanto a su composición, como fase portadora de U es el UAl_2 (81,52 % en peso de U, densidad 8,14 g/cm³ y estructura cristalográfica cúbica, FCC) pero su utilización presenta algunos inconvenientes operativos que hace más complicadas las operaciones de fabricación, fundamentalmente las de triturado, por ser altamente pirofórico.

El UAl_3 es también un excelente portador de U (74,63 % en peso de U, densidad 6,8 g/cm³ y estructura cristalográfica cúbica simple) y presenta menos problemas operativos que el UAl_2 .

La formación como fase pura es difícil dado que resulta de una reacción peritética.



En presencia de Al reacciona mediante otra reacción peritética para formar UAl_4 . Ambas reacciones peritéticas hacen que tanto el UAl_2 como el UAl_3 no sean estables en las mezclas con aluminio.

Originalmente se pensó que la presencia de UAl_4 en el núcleo activo era inconveniente (3), dado que el mismo posee estructura cristalográfica b.c. ortorrómbica y por lo tanto era susceptible a sufrir "swelling" (crecimiento o reacomodamiento no isotrópico causado mediante daño por radiación). Otro problema que se podría presentar era el debido al cambio de volumen producido por la reacción $UAl_3 + Al \rightarrow UAl_4$ y que podría provocar defectos en las placas combustibles durante el proceso de fabricación.

A fin de evitar la formación de UAl_4 se desarrollaron nuevas aleaciones (5) + Al(1) $\rightarrow UAl_4$, para lo cual se adicionó un tercer elemento que estabiliza la fase UAl_3 en las aleaciones Al-U.

Se ensayaron con éxito la adición de Zr entre 3 a 6 % en peso, Si 3 % en peso y Sn 3 % en peso en aleaciones Al-U con contenidos de U entre el 60 y 74,6 % en peso.

La introducción de estos aleantes tienen el inconveniente de que

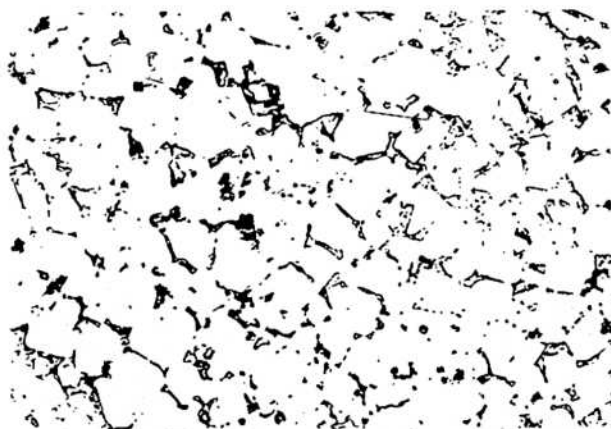


Figura 1: Al-U 74 %, 400x

es necesario aumentar el porcentaje en volumen de la fase portadora del lingote se producen los distintos intermetálicos UAl_2 , UAl_3 , y UAl_4 dependiendo de la relación U a Al de la cual se partió.

Cuando la relación porcentual de U es próxima a 74,6 %, la fase preponderante es UAl_3 con pequeñas cantidades de las otras dos fases (UAl_2 y UAl_4).

La figura muestra una micrografía donde se observa que la fase UAl_3 es la preponderante. Análisis de difracción de rayos X corrobora la presencia de UAl_3 dado que en la aleación U 74,6 % - Al sólo aparecen los picos correspondientes a esta fase.

2. Obtención de polvo de UAl_3

Se analizaron distintos métodos mecánicos de trituración de sólidos; entre los de percusión o golpe cabe destacar: el de molino a bolas y molino a martillo, y por el método de corte o vituteado: el de fresa rotativa y cuchillas rotativas.

Los molinos que utilizan el método de percusión o golpe fueron descartados por la particularidad de que no es posible controlar la proporción de polvos muy finos (malla - 325 (44 um) respecto de granulometrías entre mallas + 325 (44 um y - 120 (125 um).

Se prefirió el uso de trituradoras por corte o vituteado, donde

dora de U (para un mismo contenido en peso de U) dificultando la colaminación y además, principalmente el silicio, complica la etapa posterior de reprocesamiento del combustible irradiado.

Trabajos posteriores (4) mostraron que el cambio de volumen debido a la reacción $UAl_3 + Al \rightarrow UAl_4$ y el comportamiento bajo irradiación del UAl_4 no afectan mayormente a las placas combustibles tipo MTR. Por lo tanto en las experiencias de fabricación de compactos (núcleos) se optó por trabajar con fases portadoras provenientes de aleaciones binarias Al-U.

'DESARROLLO

1. Obtención de los compuestos UAl_x

Se parte de uranio metálico puro y aluminio 99,99 % perfectamente decapado y seco. A estos elementos se los hace reaccionar entre sí en un crisol de alúmina o magnesia, calentándolo hasta 1650° C en atmósfera de Ar a una presión de 0,537 Bar (400 mm Hg).

Esta operación es realizada en un horno a inducción y, cuando se logra la temperatura requerida, ambos elementos se encuentran formando una aleación líquida, la que es colocada en un molde de grafito revestido con pintura de alúmina. Durante el enfriamiento

los lingotes de UAlx son fresados y las virutas obtenidas se tratan en una trituradora a cuchilla rotativa.

La primera etapa del proceso (viruteado por fresado) produce virutas finas, que por su relativa plasticidad se enrollan formando pequeñas espirales. Estas, al ser procesadas mediante la trituradora a cuchilla rotativa por el tiempo de 10 segundos, forman un polvo cuya granulometría es:

Pasa malla - 120	100 %
- 140	81.3 %
- 200	46.0 %
- 270	34.3 %
- 325	26.5 %
- 450	19.5 %

Estos valores corresponden a tamices con malla ASTM y un tiempo de tamizado de 1 hora.

3. Preparación de la dispersión

La dispersión de la fase portadora de U se efectúa por mezcla de polvos de UAlx en polvo de Al. La proporción de ambos tipos de polvos está determinada por la concentración final de uranio necesaria en el núcleo.

La concentración de U (en la dispersión UAl₃-Al) en la que se centró el trabajo es de 54 % de U en peso, lo que representa un 52,6 % en volumen de UAl₃.

A los efectos de determinar la granulometría óptima del Al se efectuaron experiencias de mezclado, compactado y colaminación de núcleos con dispersiones de UAlx en polvos de aluminio con mallas - 400, - 300 y - 200.

No se encontraron diferencias apreciables luego de la laminación, pero sí una mayor densidad en los compactos hechos con el polvo de malla - 400. Causa por la cual se lo consideró el más adecuado.

El mezclado se realiza en tambor rotatorio a 35 revoluciones por minuto, con un tiempo total de mezclado de 6 horas, sacando muestras cada 2 horas de trabajo.

Se ensayaron tres granulometrías diferentes de aluminuros: a) 100 % malla - 325; b) 40 % de - 325, resto malla entre - 120 y + 325 c) 25 % malla - 325. En los tres casos se utilizó polvo de Al malla - 400. El mezclado

resultó más homogéneo en la primer alternativa (100 % malla - 325).

4. Preparación de compactos

Se prepararon compactos de diferentes características con el objeto de encontrar las condiciones óptimas para ser utilizados como núcleos en combustibles nucleares tipo placa.

La densidad de la mezcla compactada es un parámetro importante, dado que de ella depende en cierta medida la concentración de U (g/cm³) en el núcleo del combustible.

Se fabricaron pastillas de mezcla (Al - UAlx 52,6 en volumen, 54 en peso de U, 2,45 g U/cm³) compactadas a presiones de 400, 600 y 800 MPa (9,81 MPa = 1 K/mm²) obteniéndose densidades relativas de 87,0 %, 94,5 % y 97,0 % respectivamente.

Estas muestras se colaminaron utilizando la técnica de marcos y tapas, utilizando en los mismos aluminio 6061, temperaturas de laminación de 560° y 490° C, y dos secuencias de porcentajes de reducción durante la laminación, asociados a cada temperatura de trabajado. En ambos casos, y para las tres densidades analizadas, los resultados fueron buenos desde el punto de vista de fabricación.

Actualmente se está desarrollando una sistemática similar utilizando núcleos con porcentajes de 57,5 y 66,5 % de aluminuros en volumen compactados a 600 MPa.

CONCLUSIONES

Los aluminuros de uranio (UAlx) son buenos portadores para ser utilizados en combustibles nucleares tipo MTR, con alto contenido de U. Utilizando UAl₃ como fase portadora de U se fabricaron combustibles con densidad de 2,45 g U/cm³.

Los aluminuros pueden ser obtenidos mediante técnicas de fundición bajo atmósfera controlada. Con contenidos de uranio hasta 74,6 % en peso de U (contenido de U del UAl₃) pueden transformarse en polvo mediante triturado

por corte rotativo sin protección gaseosa. Con contenidos mayores de U hasta 82,0 % en peso requieren para su triturado protección con gases inertes.

Los compactos se obtienen por dispersión siguiendo técnicas de pulvimetalurgia. Estos compactos mostraron un buen comportamiento a la colaminación y permiten ser utilizados como núcleos en combustibles nucleares tipo placa MTR.

El presente trabajo permitió el desarrollo y puesta a punto de las técnicas necesarias para la obtención de polvos de aluminuros y dispersiones de éstos en aluminio en forma de compactos en escala de fabricación de estos combustibles nucleares.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen a J. GOMEZ y C. KOHUT por ensayos de colaminación y a S. ZALCMAN por los ensayos metalográficos.

BIBLIOGRAFIA

- 1) G. W. GIBSON and D. R. de BOISBLANC, "Uranium-Aluminum alloy powders for use as nuclear reactor fuels. Phillips Petroleum Company, Atomic Energy Division, Idaho Falls, Idaho, U.S.A., octubre 1963.
- 2) S. NAZARE, G. ONDRACEK and F. THUMMLER, "The technology of UAl₃ - Al irradiation test plates, Institute für Material - und Festkörperforschung, Karlsruhe, W. Germany, April 1973.
- 3) A. JESSE, G. ONDRACEK and F. THUMMLER, "Preliminary studies of the fabrication UAl₃ - Al Test-Plates by Powder-Metallurgical Techniques" Powder Metallurgy, 1971, Vol. 14, Nº 28.
- 4) S. NAZARE, G. ONDRACEK and F. THUMMLER, Investigation on UAl₃-Al dispersion fuels for high-flux Reactor - Journal of Nuclear Material 56 (1975), 251.
- 5) R. BOUCHER, J. Nuclear Materials 1956, 1, 13.

SERVICIO I.A. 21