

OBTENCION DE NUCLEOS CON ALTA CONCENTRACION DE URANIO PARA COMBUSTIBLES NUCLEARES TIPO PLACA (MTR) POR DISPERSION DE ALUMINUROS DE URANIO EN ALUMINIO.

R.A. Morando, H. Raffaeli, D.E. Balzaretti

Gerencia de Desarrollo. Departamento de Materiales. CNEA.

A. 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 el método de fabricación se realizaba fundiendo una aleación Al-U de 15 a 20% de U y luego se laminaba hasta las di mensiones requeridas.

El alto porcentaje de U (alrededor del 54%) que debe tener el combustible no hace posible utilizar el método mencionado por problemas de segregación en el lingote colado y por la imposibilidad de ser laminado.

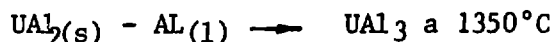
Se considera entonces que el camino más adecuado para obtener núcleos con alto contenido de U es el de pulvimetalurgia, en base a una fase portadora de U y otra dúctil para obtener un núcleo laminado.

Entre las distintas fases portadoras de U posibles se encuentran óxidos, aluminos y siliciuros ($U(Al_x, Si)_x$) etc.

En el presente trabajo se analizan los intermetálicos formados por Al y U (UAl_x). Como fase metálica dúctil para obtener un núcleo laminable se considera adecuado utilizar aluminio en polvo por su alta conductividad térmica y baja absorción neutrónica.

El intermetálico ideal, en cuanto a su composición, como fase portadora de U es el UAl_2 (81.52% p de U y densidad 8.14 g/cm^3) pero su utilización presenta algunos inconvenientes operativos que hace algo más complicadas las operaciones, fundamentalmente las de triturado por ser altamente pirofórico.

El UAl_3 es también un excelente portador de U (74.63% p de U y densidad 6.8 g/cm^3) 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.

Desde el punto de vista tecnológico no es necesario obtener un compuesto puro como fase portadora de U por lo tanto es posible utilizar aleaciones de Al-U que contengan dos y hasta los tres intermetálicos dado que se comprobó que a pesar de la estructura tetragonal posee

un buen comportamiento bajo irradiación.

Para evitar las reacciones peritéticas se analizaron aleaciones ternarias $UAlZr$ (3 a 6%) . $UAlSi$ (3%) y $UAlSn$ (2%). Todos estos aleantes permiten estabilizar las fases $U(Alx)_3$ evitando la formación de la fase UAl_4 y además debido a su cristalografía cúbica mejoran las propiedades de ductilidad con respecto a la fase UAl_4 que posee cristalografía tetragonal. La introducción de estos aleantes tiene el inconveniente de complicar la etapa de reprocesamiento.

B DESARROLLO

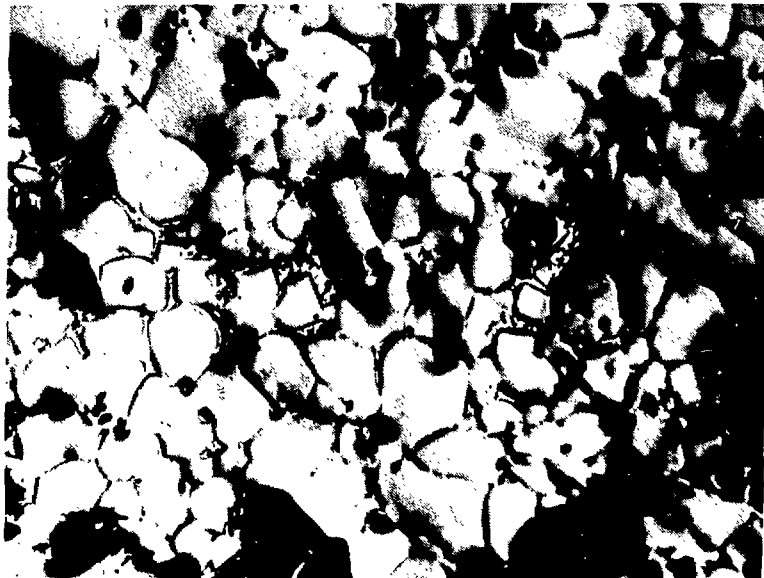
1. Obtención de los compuestos UAl_x

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 magnesita, calentándolo hasta $1650^\circ C$ en atmósfera de Ar con 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 colada en un molde de grafito revestido con pintura de alúmina. Durante el enfriamiento 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 viruteado: 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 μ)) respecto de granulometrías entre mallas +325 (44 μ) y -120 (125 μ).

Se prefirió el uso de trituradoras por corte o viruteado, donde los lingotes de UAl_3 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 UAl_3 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 que se centró los trabajos es de 54% de U en peso, lo que representa un 52.6% en volumen de UAl_3 en Al.

A los efectos de determinar la granulometría óptima del Al se efectuaron experiencias de mezclado, compactado y colaminación de núcleos con dispersiones de UAl_3 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/cm^3) en el núcleo del combustible.

Se fabricaron pastillas de mezcla (Al - UAl_3 55% en volumen, 55% p de U, 2.6 g U/cm^3) compactadas a presiones de 400, 600 y 800 MPa ($9.81 \text{ MPa} = 1 \text{ K/mm}^2$) 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°C y 490°C , y dos secuencias de porcentajes de reducción durante la laminación, asociados a cada temperatura de trabajo. 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.

C CONCLUSIONES

Los aluminuros de uranio (UAl_3) son buenos portadores de alto contenido de uranio para ser utilizados en combustibles nucleares tipo MTR.

Pueden ser obtenidos mediante técnicas de fundición bajo vacío y/o atmósfera controlada. Con contenidos de uranio hasta 74.6 % p de U (contenido de U del UAl_3) pueden transformarse en polvo mediante triturado por corte rotativo sin protección gaseosa.

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.

D AGRADecIMIENTOS

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

E BIBLIOGRAFIA

- 1) G.W. GIBSON and D.R. de BOISBLANC, "Uranium-Aluminium 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 UAl_3 - Al irradiation test plates, Institute für Material - und Festkörperforschung, Karlsruhe, W. Germany, April 1973.