

IRRADIATION OF DIFFUSION COUPLES U-Mo/Al. THERMAL CALCULATION.

Fortis A.M. ⁽¹⁾, Denis A. ⁽²⁾ y Mirandou M. ⁽¹⁾

⁽¹⁾ U.A. Materiales, ⁽²⁾ U.A. Combustibles Nucleares,
Centro Atómico Constituyentes, CNEA, Argentina

Abstract

The development of new low enrichment fuel elements for research reactors has lead to obtaining a number of compounds and alloys where the decrease in the enrichment is compensated by a higher uranium density in the fuel material. This has been achieved in particular with the uranium silicides dispersed in an aluminum matrix, where uranium densities about 4.8 g/cm^3 have been reached. Among the diverse candidate alloys, those of U-Mo with molybdenum content in the range 6 to 10 w% can yield, upon dispersion, to uranium densities of about 8 g/cm^3 . The first irradiation experiments employing these alloys in fuel plates, either dispersed in Al or monolithic revealed certain phenomena which are worthy of further studies. Failures have been detected apparently due to the formation of reaction products between the fissile material and the aluminum matrix, which exhibit a poor irradiation behavior.

An experiment was designed which final purpose is to irradiate diffusion couples U-Mo/Al in the RA3 reactor and to analyze the interaction zone at the working temperatures of the fuel elements. A simple device was built consisting of two Al 6063 blocks which press the U-Mo sample in between, located in an Al capsule. The ensemble is placed in a tube, which can be filled with different gases and introduced in the reactor. For safety reasons temperature predictions are necessary before performing the experiment. To this end, the COSMOS code was used. As a preliminary step and in order to test to exactness of the numerical estimations, two irradiations were performed in the RA1 reactor with He and N₂ as transference gases. The agreement between the measured and calculated temperatures was good, particularly in the case of He and, along with the numerical predictions for the RA3 reactor, provides a reliable basis to proceed with the following steps.

IRRADIACIÓN DE PARES DE DIFUSIÓN U-Mo/Al. CÁLCULO TÉRMICO.

Fortis A.M. ⁽¹⁾, Denis A. ⁽²⁾ y Mirandou M. ⁽¹⁾

⁽¹⁾ U.A. Materiales, ⁽²⁾ U.A. Combustibles Nucleares,
Centro Atómico Constituyentes, CNEA, Argentina

Introducción

El desarrollo de nuevos elementos combustibles de bajo enriquecimiento para reactores de investigación y producción de radioisótopos, ha llevado a la obtención de un conjunto de compuestos y aleaciones en los que la reducción en el enriquecimiento se compensa con una mayor densidad de U dentro del combustible. Esto se ha logrado en particular con siliciuros de U, dispersos en una matriz de Al, con los que se alcanzaron densidades de U de hasta 4.8 g/cm³. Entre otras aleaciones candidatas, las de U-Mo, con un contenido de entre 6 % y 10% en peso de Mo pueden llegar, una vez constituida la dispersión óptima, a densidades de U cercanas a 8 g/cm³. Los primeros experimentos bajo irradiación usando estas aleaciones, en combustibles tipo placa dispersos en Al [1,2] o monolíticos [3], revelaron fenómenos que merecen ser estudiados. Se han detectado algunas fallas, las que se deberían a un pobre comportamiento bajo irradiación de los productos de reacción entre el material fisil (entendiéndose éste como la aleación U-Mo) y la matriz de Al [4,5].

Debido al buen contacto que existe entre el material fisil y el Al en los elementos combustibles, se forman compuestos intermetálicos por interdifusión en la zona de contacto ya sea en la fabricación y/o durante la irradiación. La aparición de estos compuestos, que presentan menor conductividad térmica que los elementos de partida, al afectar la extracción calórica, puede desencadenar una serie de fenómenos perjudiciales para el funcionamiento del combustible, como el incremento de su temperatura y de su hinchado, y ser la causa de fallas graves como la rotura de la vaina y la posterior dispersión de material radiactivo en el ambiente. Debido a que la formación de los productos de interacción involucra el consumo del aluminio de la matriz, es decir, del elemento de mayor conductividad térmica, el resultado es el aumento de la temperatura del combustible; esto, a su vez incrementa el ritmo de interacción ya que la interdifusión es dependiente de la temperatura. En los combustibles de U-Mo el ritmo de formación y el contenido de aluminio de la fase de interacción es mucho mayor que en los combustibles de siliciuro de uranio.

Los estudios post-irradiación de los experimentos realizados en CEA [5] mostraron efectivamente que la zona de interacción entre las partículas de U-Mo y el Al contendría un compuesto muy rico en Al cuya composición sería de aproximadamente de 88% atómico de Al. Por otra parte, en los experimentos a muy alto quemado (80% at. U²³⁵) se encontró una considerable porosidad que se desarrolla en el límite entre la zona de interdifusión y el Al, cuando la interacción ha consumido la mayor parte de la matriz de Al [4,6]. Nuevos y detallados estudios post-irradiación de los experimentos RERTR-4, RERTR-5 [7,8] mostraron la existencia de este fenómeno en forma incipiente. El

comportamiento bajo irradiación también se estudia por simulación mediante los códigos PLATE y MAIA [9], y DART [10].

Se han realizado experimentos de interdifusión *sin irradiación* entre aleaciones U-Mo y Al en pares de difusión a altas temperaturas. Se ha mostrado que la zona de interdifusión entre 450 °C y 580 °C está formada mayoritariamente por los compuestos (U-Mo)Al₃ y (U-Mo)Al₄ [11,12] y una pequeña fracción por un compuesto ternario de mayor contenido de Al (87% atómico de Al) identificado como el compuesto Al₂₀Mo₂U [12].

Dependiendo de la densidad de potencia del combustible, los productos de interacción rápidamente se convierten en la mayor fracción del volumen, mientras la matriz de Al virtualmente desaparece. El incremento de temperatura asociado a esto no parece influir en el hinchado del U-Mo, sin embargo hay un aumento de volumen asociado con la formación misma del producto de la interacción. Por esto, y a la luz de los más recientes resultados bajo irradiación, es que el estudio de los componentes de esta interacción es de primera importancia en la evaluación del comportamiento de los combustibles basados en U-Mo/ Al.

Desarrollo experimental y cálculos

El efecto de la irradiación en la conformación de las fases mencionadas es uno de los puntos clave para la aceptación de estas aleaciones como constitutivas de los nuevos combustibles de bajo enriquecimiento. Se diseñó un experimento cuyo objetivo final es irradiar pares de difusión en el reactor experimental RA3 de CNEA y analizar el comportamiento de la zona de interacción UMo/Al a temperaturas próximas a las de trabajo de los elementos combustibles y con distintas aleaciones de aluminio. El objeto de usar aleaciones además de aluminio puro tiene como finalidad analizar el efecto de los aleantes constituyentes de las mismas en la conformación de la fase de interacción.

Los pares de difusión ensayados fuera de pila estaban conformados por una aleación de U-Mo colocada en una prensa de Al 6063 [12]. Para irradiar pares similares en el Reactor RA3 fue necesario realizar un estudio térmico preliminar.

Irradiar en un reactor como el RA3 exige una estimación de la temperatura a la que llegaría el dispositivo experimental diseñado. Esta temperatura dependerá del número de fisiones, es decir, del flujo neutrónico térmico en el lugar de irradiación, de la temperatura de refrigeración, de la geometría del dispositivo y de los gases de transferencia térmica a utilizar. Dado que el par de difusión no puede estar en contacto con el agua del reactor, la irradiación se debe realizar en una cápsula y/o en una instalación para irradiar en la que sea posible aumentar la temperatura, si fuera necesario, para lograr una velocidad de difusión razonable en tiempos de irradiación no demasiado prolongados [13].

En primer lugar, se llevaron a cabo dos irradiaciones de una muestra de U-Mo en el reactor experimental RA1, utilizando el dispositivo experimental que se muestra en la Figura 1. Este reactor tiene la ventaja operativa de permitir regular su potencia con el levantamiento de barras a medida que el experimento lo requiera. Para las mismas

condiciones, se realizaron simulaciones numéricas empleando el código COSMOS [14] y sus resultados se compararon con los medidos en los experimentos. Esta etapa del trabajo fue diseñada con el propósito de evaluar la calidad de la simulación numérica. Si el código predice con buena aproximación las temperaturas a alcanzar, puede ser aplicado para obtener el comportamiento en otros reactores con otras potencias y además ensayar otras geometrías posibles, como los pares de interacción de los combustibles monolíticos, los cuales no requieren una prensa, ya que se conforman con soldadura por fricción entre el combustible y el Al.

Con una geometría igual a la que se utilizaría en el reactor RA3, se ensayó una muestra de aleación U-7 % p/p Mo, fabricada con uranio natural, colocada en una prensa de difusión similar a las usadas en los ensayos pre-irradiación [Fig. 1]. Se irradió dentro de una facilidad tipo cápsula [15], con posibilidad de efectuar vacío e inyectar gases inertes a diferentes presiones. Se usaron dos gases de transferencia (He y N₂), cuyas conductividades térmicas son marcadamente diferentes, y se midió la temperatura alcanzada en la superficie de la muestra de U-Mo con el reactor a una potencia de 40 kW, mediante una termocupla compacta con aislación de OMg resistente a la radiación.

El cálculo térmico se realizó suponiendo una muestra cilíndrica de igual espesor y volumen que la muestra real. El radio del cilindro equivalente resultó de $r=0.3385$ cm. Para calcular la potencia que se genera por unidad de volumen durante su irradiación se tuvo en cuenta que está constituida por una aleación de uranio natural (0.72% en peso de U²³⁵) con 7% en peso de molibdeno, de densidad $\rho=17.4$ g/cm³. Se supone que el flujo de neutrones térmicos en el sitio de irradiación que ocupa el dispositivo en el reactor RA1 es $\Phi = 0.66 \times 10^{12}$ neutrones/(cm² s). La sección eficaz de fisión del U²³⁵ en el rango térmico es $\sigma=577$ barns. Se obtiene así el número de fisiones por unidad de

tiempo y de volumen, $\dot{F} = \rho p \frac{A}{M} q \Phi \sigma = 1.122 \times 10^{11} \frac{\text{fisiones}}{\text{cm}^3 \text{ s}}$, donde

$p=0.93$ es la fracción en peso de uranio en la aleación

$q=0.0072$ es la fracción de U²³⁵ (enriquecimiento)

A es el número de Avogadro = 6.02×10^{23} átomos/mol

M es el peso molecular promedio del uranio = 238.03 g/mol

En cada evento de fisión se produce en promedio una energía de 202 MeV, la mayor parte de la cual se manifiesta como energía cinética de los productos de fisión y como emisiones β y γ . A excepción de los aproximadamente 10 MeV que transportan los neutrinos, el resto de la energía aparece finalmente como calor en los elementos combustibles. Así, por cada fisión se genera una energía calórica de $E_f \cong 192$ MeV. La densidad de potencia en la muestra es entonces

$$Q = \dot{F} \cdot E_f = 3.451 \frac{\text{W}}{\text{cm}^3}$$

Para la aplicación del código COSMOS, que utiliza un esquema de elementos finitos, se realizó un cálculo bidimensional empleando un sistema de coordenadas centrado en la muestra, con un eje en la dirección del radio y otro en la dirección longitudinal del dispositivo que contiene a la muestra (prensa de difusión). Se supuso simetría de revolución alrededor de este último eje. El dominio espacial donde se

resuelve la ecuación diferencial del calor se discretizó mediante elementos rectangulares con 8 nodos por elemento; entre ellos se realizó una interpolación lineal de la función incógnita. En la Tabla 1 se muestran las conductividades térmicas empleadas.

Resultados y conclusiones

En la Tabla 2 se resumen los resultados obtenidos de las irradiaciones en el reactor RA1 y los cálculos para la estimación de una irradiación en el reactor RA3.

En la Fig. 2 se presenta la distribución de temperaturas obtenida con el código COSMOS para el caso en que el gas de llenado del dispositivo es He y la temperatura del agua de refrigeración es de 12°C. El cálculo predice que el centro de la muestra se encuentra durante la irradiación en el reactor RA1 a 14.6°C y su superficie a 14.4°C. Este último valor coincide con el medido, dentro del error experimental. En el caso de uso del N₂ como gas de transferencia, los resultados se aproximaron a los medidos pero con mayor error.

En la Fig. 3.a se da, para ambos experimentos, la temperatura en función del radio, en la sección transversal $y=0$; en la Fig. 3.b se ve cómo varía la temperatura según el eje longitudinal $r=0$. Se observa que la temperatura toma un valor casi uniforme en toda la muestra y en la cápsula de Al, que la caída de temperatura se produce fundamentalmente en la capa de gas que rodea al portamuestra y que esta caída es mucho más marcada cuando el gas de transferencia es N₂.

En la Figura 4 se muestra el flujo calórico total en cada punto. El análisis de sus componentes radial y longitudinal refleja que más del 90% del calor generado en la muestra fluye en la dirección y a través de sus dos tapas. En cambio, el flujo de calor que sale de la cápsula lo hace mayoritariamente a través de su superficie lateral en la dirección radial y es removido por el gas refrigerante. Esto indica que el gas de llenado juega un papel importante ya que su baja conductividad térmica es el factor limitante de la evacuación de calor a través del tubo e influye en forma sensible en la temperatura máxima que se alcanza en la muestra.

Como resultado de estas mediciones y a través de la simulación mediante el código COSMOS se estima que, si la misma muestra se irradia en el reactor RA3, para una temperatura del agua de refrigeración de 35°C, con un flujo de neutrones térmicos en la posición de irradiación de 5×10^{13} n/cm²s, y si el dispositivo se llena con He, la temperatura a alcanzar será de 221°C en el centro de la muestra y de 207°C en su superficie (ver Figura 5).

En principio y a la luz de estos resultados no sería necesaria la inyección externa de calor para lograr una temperatura próxima a los 200 °C, que representa la temperatura promedio alcanzada en un combustible fresco tipo placa; la velocidad de difusión a esta temperatura es suficiente para que en pocos meses de irradiación pueda analizarse la zona de interacción U-Mo/Al.

Similares estudios pueden realizarse para otras geometrías y con una mayor cantidad de muestras a ser irradiadas simultáneamente.

Bibliografía

- [1] M. Meyer, G.L. Hofman, S. Hayes, C. Clark, T. Wiencek, J. Snelgrove, R. Strain, K.H. Kim. *J.Nucl.Mater.*, 304 (2002) 221.
- [2] A. Travelli, XXIV International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, San Carlos de Bariloche, Argentina, 3-8 de noviembre de 2002.
- [3] G. Hofman y M. Mayer, XXIV International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, San Carlos de Bariloche, Argentina, 3-8 Noviembre 2002.
- [4] G. L. Hofman, Y. S. Kim, M. R. Finlay, J.L. Snelgrove, S. L. Hayes, M. K. Mayer, C. R. Clark y F. Huet. 8th International Meeting on Research Reactor Fuel Management, Munich, Alemania, 21-24 de marzo de 2004.
- [5] F. Huet, V.Marelle, J.Noïrot, P.Sacristan, P. Lemoine, XXV International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Chicago Ill. USA, 5-11 de octubre de 2003.
- [6] A. Leenaers, S. Van Den Berghe, E. Koonen, L. Saannen, M. Verwerft, C. Jarousse, F. Huet, M. Trotabas, M. Boyard y S. Guillot. 8th International Meeting on Research Reactor Fuel Management, Munich, Alemania, 21-24 de marzo de 2004.
- [7] M.Meyer, G.L.Hofman, R. Strain, C. Clark, J.Stuart. XXIII International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Las Vegas Nv.,1-6 de octubre de 2000.
- [8] G. Hofman, Y. S. Kim, M.R. Finlay, J. Snelgrove, S.Hayes, M.Meyer, C. Clark. XXV International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Chicago Ill. USA, 5-11 de octubre de 2003.
- [9] S. L. Hayes, M.K.Meyer, G. L. Hofman y J.L.Snelgrove, XXV International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Chicago Ill. USA, 5-11 de octubre de 2003.
- [10] H. Taboada, J.Rest, R. Saliba, M. V. Moscarda. XXV International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Chicago Ill. USA, 5-11 de octubre de 2003.
- [11] A. Leenaers, S. Van Den Berghe, E. Koonen, L. Saannen, M. Verwerft, C. Jarousse, F. Huet, M. Trotabas, M. Boyard y S. Guillot. 8th International Meeting on Research Reactor Fuel Management, Munich, Alemania, 21-24 de marzo de 2004.
- [12] M. Mirandou, S. Balart, M. Ortiz, M. Granovsky, *J. of Nucl. Mater.*, 323 (2003), 29-35.
- [13] H.C. González y A.M. Fortis, Informe de seguridad RA1, Cap. 10, Tomo III, Licenciamiento de reactores experimentales, 1991, sec. 10- 3.1 a 10-3.16.
- [14] Código COSMOS/M 2.0, January 1998.
- [15] A.M. Fortis. y H.C. González, Informe Técnico CCTP 16, (1989)17.

Figuras y tablas

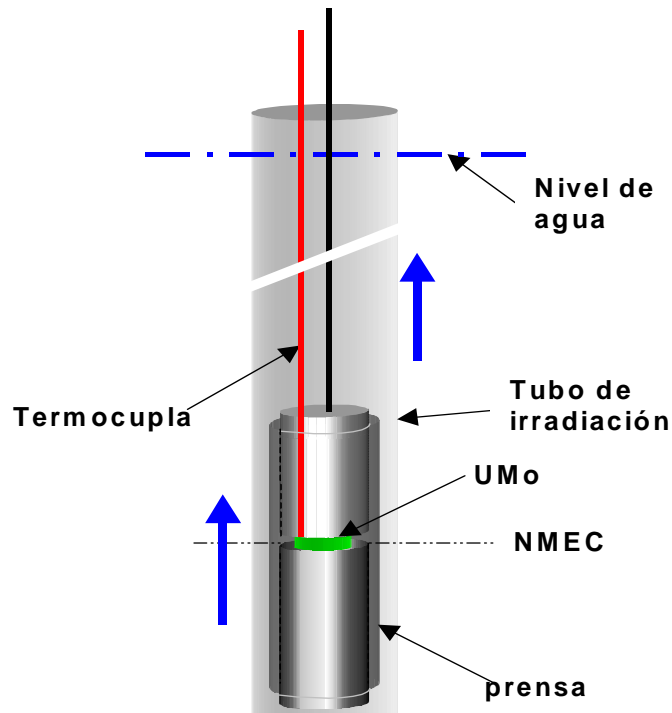


Figura 1: *Esquema del dispositivo experimental de irradiación*

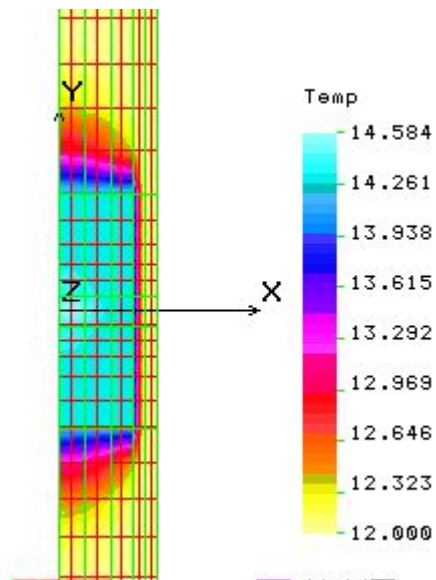


Figura 2: *Curvas de nivel para mostrar la distribución de temperatura en la región del dispositivo próxima a la muestra, con He como gas de transferencia, durante su irradiación en el reactor RA1.*

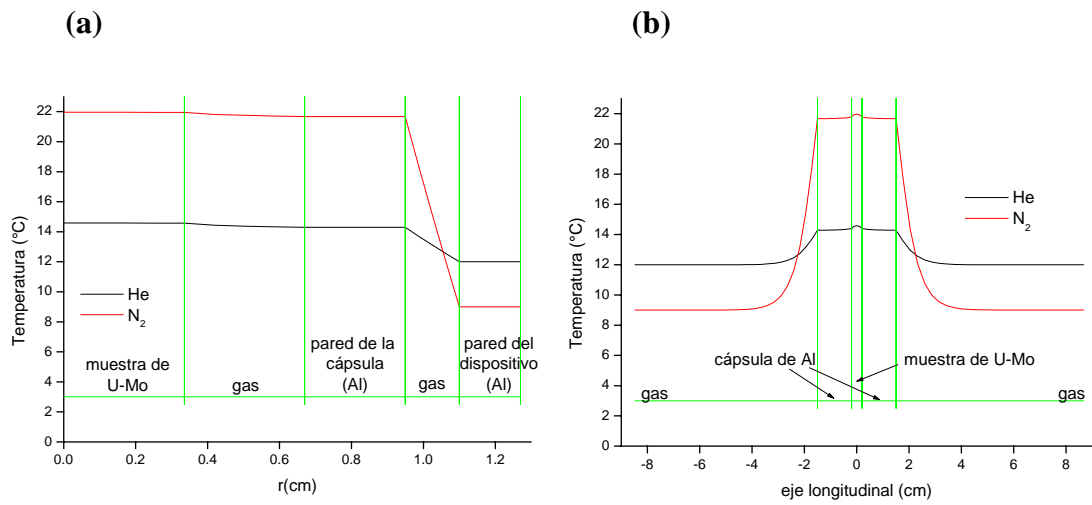


Figura 3: Temperatura en el dispositivo durante la irradiación en el RAI, con He y con N_2 como gas de transferencia. a) según el radio, en el plano transversal $y=0$; b) según el eje longitudinal $r=0$.

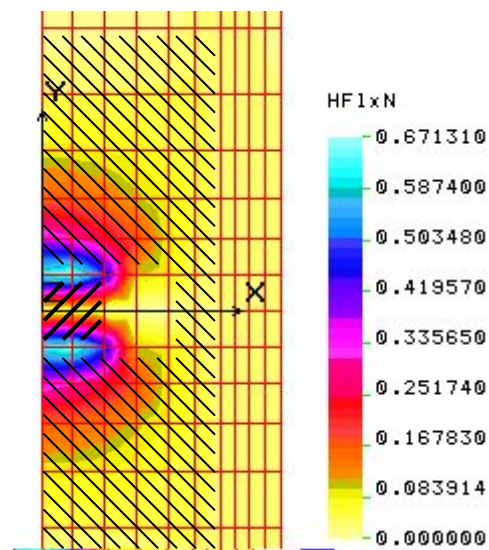




Figura 4: Curvas de nivel para mostrar la distribución de flujo calórico, en las mismas condiciones que la Figura 2. El rayado  indica a la muestra y  al portamuestra.

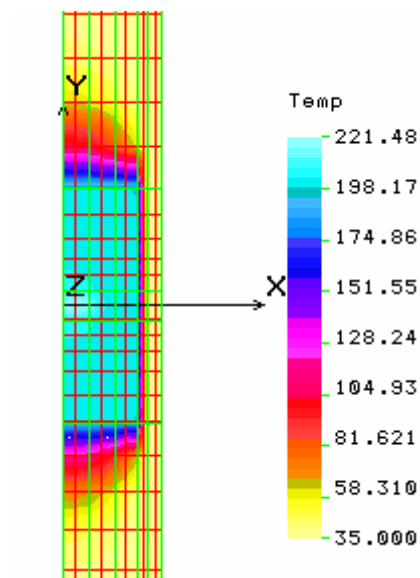


Figura 5: Curvas de nivel para mostrar la distribución de temperatura en la región del dispositivo próxima a la muestra, con He como gas de transferencia, durante una irradiación simulada en el reactor RA3.

Tabla 1: Conductividades térmicas utilizadas

	k (W/cm.K)
U metálico a 670K	0.35
Al 6061	1.65
N ₂	$5.314 \times 10^{-6} T^{0.6898}$. Para $T=300K$, 2.7×10^{-4}
He	$2.639 \times 10^{-5} T^{0.7085}$. Para $T=300K$, 1.5×10^{-3}

Tabla 2: Temperaturas medidas y calculadas

Reactor	$\Phi_{\text{térmico}}$ (n cm ⁻² s ⁻¹)	Gas	Temp. de refrigeración (°C)	Temperatura en la superficie de la muestra de U-Mo	
				medida (°C)	calculada (°C)
RA1 (40kW)	$0,66 \times 10^{12}$	He	12	14	14.28
RA1 (40kW)	$0,66 \times 10^{12}$	N ₂	9	16	21.75
RA3 (5 MW)	5×10^{13}	He	35	-	207.6