

DESARROLLO ALCANZADO EN EL PROCESO DE FABRICACIÓN DE PLACAS Y MINIPLACAS DE U-Mo-Zry-4

LÓPEZ M.¹, PICCHETTI B.², GONZALEZ A.³, TABOADA H.⁴
¹marlopez@cnea.gov.ar; ²picchetti@cnea.gov.ar; ³agonzale@cnea.gov.ar; ⁴taboada@cnea.gov.ar

Gerencia del Ciclo de Combustible Nuclear, CAC, CNEA
Avenida General Paz 1499 – Argentina

RESUMEN

La aleación de Uranio-Molibdeno (UMo) fue elegida para fabricar combustibles de alta densidad; dado su buen comportamiento bajo irradiación debido a su estructura cristalina bcc de tipo metaestable. El estudio se focaliza en la utilización de estas aleaciones para desarrollar placas cuyo núcleo combustible es una fina lámina metálica de U-Mo, mal llamado núcleo monolítico. La aleación de circonio llamada Zircalloy-4 (Zry-4) es ampliamente utilizada en la industria nuclear en los combustibles para centrales nucleares como revestimiento metálico, dada su baja sección eficaz de captura de neutrones y sus excelentes propiedades mecánicas y resistencia a la corrosión.

El proceso de fabricación de las miniplacas consiste en un conjunto formado por dos tapas de Zry-4 y un marco dentro del cual se encuentra el núcleo laminar de UMo; este conjunto es soldado por los bordes y co-laminado a alta temperatura. El porcentaje de Molibdeno entre 7% y 10% (masa), garantiza la presencia de la estructura bcc gamma al tiempo que no penaliza en demasía la economía neutrónica debido a la presencia del Mo⁹⁸, absorbedor neutrónico.

Con el fin de optimizar el proceso de laminación, se decidió estudiar diferentes parámetros experimentales, tales como: la temperatura de laminación, la fuerza aplicada por la laminadora y la presencia o no de huecos (*gaps*) entre el marco y el núcleo. Bajo estas condiciones se busca estudiar la interdifusión entre los distintos materiales, el pegado entre las partes del conjunto y la formación o no de engrosamiento transversal en los extremos del núcleo, también llamado *dog-bone*.

Los resultados experimentales muestran que 650°C es una temperatura adecuada de co-laminación; a mayores temperaturas no sólo se observa una mayor interdifusión Zry-4-UMo –fenómeno que puede llevar a la formación de acúmulos de Mo- sino que además el *dog bone* aumenta notablemente. Al aumentar la fuerza de laminación el mismo efecto se obtiene con respecto a la interdifusión. Además, la ausencia de gases oxidantes dentro del núcleo, como el oxígeno, es esencial para obtener un correcto pegado entre los materiales.

Con la información recolectada se busca poder llevar escalar el proceso de laminación de miniplacas a placas de mayor tamaño.

CNEA DEVELOPMENTS IN U-Mo-Zry-4 MINIPLATES AND PLATES FABRICATION PROCESS

LÓPEZ M.¹, PICCHETTI B.², GONZALEZ A.³, TABOADA H.⁴

¹marlopez@cnea.gov.ar; ²picchetti@cnea.gov.ar; ³agonzale@cnea.gov.ar; ⁴taboada@cnea.gov.ar

Gerencia del Ciclo de Combustible Nuclear, CAC, CNEA
Avenida General Paz 1499 – Argentina

ABSTRACT

The Uranium Molybdenum alloy was the material chosen to develop the fabrication of high density nuclear fuel, due to its excellent behaviour under irradiation –a consequence of the metastable bcc crystalline structure-. At present, the study is focused on the application of this alloy to monolithic fuel plate development, which fuel core is a thin U-Mo layer. The Zircalloy-4 (Zry-4) alloy used as cladding material is extensively known in the nuclear industry due to its low neutron capture section efficiency and excellent mechanical and corrosion resistance properties.

Miniplates fabrication process involves a welded compact made of two Zry-4 covers and a frame surrounding a monolithic U-Mo core, which is co-rolled under high temperature. Molybdenum contains of 7% to 10% (mass) in U-Mo alloys guarantees the presence of meta-stable bcc gamma phase and, at the same time, does not penalize the neutron economy due to Mo⁹⁸ presence.

In the case of UMo monolithic miniplates relevant parameters of fabrication, considering the behaviour of the U-Mo alloys reported in many work and in order to optimize the o-rolling process, have been revised: co-rolling temperature, compressive stress and presence of gap. Under this experimental conditions can be studied the the interdiffusion layer, the binding between materials and the Dog Bone.

The experimental results shows that 650°C is an optimal co-rolling temperature; at higher temperatures not only a bigger interdiffusion layer is observed –this phenomenon can lead to a region enriched in Molybdenum- but also a bigger Dog Bone is obtained. Working at higher compressive stress has the same effect in relation to the interdiffusion layer. In addition, the absence of gases in the core is essential for the correct binding of the materials.

Concerning the monolithic U-Mo plates fabrication, involved in the ALT FUTURE experiment a new workshop has been conditioned. The aim is to use all the valuable information collected during the miniplates fabrication for the full scale plate fabrication development.

Introducción

La decisión de experimentar para calificar núcleos combustibles laminares (monolíticos) radica en lograr un aumento en la densidad del combustible [1, 2, 3]. Considerando este objetivo, y teniendo en cuenta las propiedades del Zry-4 en la industria nuclear [4], la CNEA está desarrollando miniplacas con núcleo laminar de U-Mo y Zry-4 como revestimiento metálico. El porcentaje de Molibdeno varía entre 7% y 10% (masa).

La estructura cristalina *hcp* que presentan los metales como el Zirconio, juega un rol muy importante en los reactores nucleares. Las propiedades microscópicas y macroscópicas que presenta este material durante la irradiación han sido bien estudiadas [5, 6, 7, 8]. El Zircalloy-4 es la primera barrera del material radioactivo, lo que significa que debe confinar al U-235 así como a los productos de fisión. A su vez, debe mantener su integridad durante y después de la irradiación, durante el transporte y durante el almacenamiento del combustible tras el servicio nuclear.

Las aleaciones de Uranio-Molibdeno que contengan más de un 5% de Mo (masa), laminadas por encima de 565°C [8] presentarán estructura gamma metaestable. Las miniplacas laminadas a 650°C, 700°C, 750°C y 800°C presentan diferentes resultados en cuanto a la difusión UMo-Zr y la aparición del *dog-bone*. Además de la temperatura, se consideraron otros parámetros: la fuerza aplicada por la laminadora durante el proceso contribuye a un correcto pegado de los materiales; mientras que la ausencia de gas dentro del conjunto es esencial para obtener resultados satisfactorios.

Otro motivo por el cual se utiliza Zry-4 en vez de Al es para evitar la formación de zonas de interacción indeseables entre el U, Mo y Al, respecto del hinchado explosivo por la coalescencia de burbujas de gases de fisión. Sin embargo, cuando la interacción da lugar a un compuesto estable, como en el caso del U, Mo y Zry-4 puede beneficiarse el pegado del núcleo con las tapas.

Materiales y métodos

Las miniplacas fueron realizadas mediante la co-laminación de un conjunto conformado por dos tapas y un marco de Zry-4, a modo de revestimiento metálico. En el centro del marco se colocó un núcleo de U-Mo (8 o bien 10% en masa). El conjunto fue soldado por los bordes externos. Posteriormente, se realizó el laminado a cuatro temperaturas diferentes: 650°C, 700°C, 750°C y 800°C.

Para estudiar el comportamiento del combustible en presencia de gases, en algunas miniplacas se dejó un espacio (*gap*) entre el marco y el núcleo.

La aleación de U-Mo fue cortada de una placa provista por el INL (*Idaho National Laboratory-USDoE*). Los bordes y la superficie fueron pulidos con una pulidora hasta papel #1500. El tratamiento fue finalizado con un pulido con

pañó y pasta de diamante de 3 μm . El mismo procedimiento fue aplicado al marco y las tapas de Zry-4.

Las dimensiones del núcleo fueron 20 mm de alto y largo y 1 mm de espesor. Las dimensiones de las tapas fue de 5 mm x 5 mm (alto y largo) y 2.7 mm de espesor. El marco fue llevado a las mismas dimensiones que la tapa, pero espesor 1 mm. El espesor final de las miniplacas tras la laminación fue de 1.4 – 1.7 mm.

La laminación se llevó a cabo en varios pasos, calentando las miniplacas durante periodos de aproximadamente 5 minutos entre cada paso. Se utilizó un horno sin atmósfera controlada.

Una vez obtenidas las miniplacas se realizaron cortes con el fin de obtener pequeñas muestras correspondientes a la zona del núcleo. Las mismas fueron incluidas en acrílico y pulidas.

Finalmente, se realizaron radiografías de las miniplacas y se observaron todas las muestras en un SEM (*Scanning Electron Microscopy*). En la *tabla 1* se resumen las condiciones experimentales de preparación de cada una de las muestras.

La presión de la laminadora corresponde al límite máximo de fluencia durante la laminación, calculado para cada paso de la misma según la *ecuación (1)*.

$$\bar{Y}_m = \frac{P}{2\pi \cdot R \cdot \Delta t \cdot w \cdot f} \quad (1)$$

Donde: Y_m es el límite máximo de fluencia; P es la potencia de la laminadora; R es el radio de los rodillos; Δt es la diferencia de espesor entre la muestra que entra y la que sale de la laminadora; w es el ancho de la superficie; f es la frecuencia de giro de los rodillos.

Resultados

Las muestras 650HF fueron laminadas a 650°C y alta presión (4372-29152 MPa). La diferencia principal entre 650HF y 650HF-G es que ésta última presenta un *gap* entre el núcleo y el marco. Un corte en la placa muestra que el revestimiento metálico de Zry-4 se encuentra parcialmente despegado en la muestra 650HF-G; al contrario, la miniplaca 650HF logró pegarse completamente. En ambos casos, considerando la presión aplicada durante la laminación, puede observarse claramente una intercapa de difusión (*Figura 1*).

El mismo resultado se observó en las muestras laminadas a baja fuerza de laminación (371-2394 MPa) e igual temperatura: 650LF y 650LF-G. En este caso no se observa una zona de interdifusión (*Figura 2*).

Se estudió, además, la influencia de la temperatura sobre dicha zona. Trabajando a baja fuerza de la laminadora se realizaron muestras a distintas temperaturas: 650°C, 700°C, 750°C y 800°C. Se observa en las *figuras 3, 4, 5, y 6* que a medida que aumenta la temperatura la intercapa de difusión se hace mas ancha.

La influencia sobre la capa de interdifusión de la fuerza de la laminadora se estudió sobre una muestra laminada a 650°C, pero con una presión entre 4372 y 29152 MPa (mayor que las mostradas anteriormente). El resultado obtenido se puede observar en la *figura 1 izq.* Bajo estas condiciones experimentales puede observarse claramente la zona de interdifusión.

Finalmente, se estudió la influencia de la temperatura sobre el *Dog Bone*. Se observó que a mayor temperatura el *dog bone* obtenido es mayor. Para estimar el espesor del mismo dos métodos fueron utilizados: un método cualitativo por el cual se estudia el *Grey Value* obtenido en las radiografía (*Tabla 2*), dado que este parámetro es un indicio de la cantidad de material presente; un método cuantitativo que consiste en la medición del espesor sobre imágenes SEM (*Tabla 3*).

Si bien la técnica cualitativa del *Grey Value* no brinda datos certeros, es valiosa como estimación dado que este método no es destructivo.

Discusión y conclusiones

Las condiciones óptimas de fabricación de miniplacas deben establecerse considerando varios parámetros, tales como temperatura de laminación, presencia de gases, fuerza de la laminadora, impurezas en el material y limpieza de la superficie.

La temperatura de laminación puede ser determinante de la aparición y forma del *Dog Bone*: a mayor temperatura de trabajo mayor es la diferencia de espesor entre los extremos y el centro. Este exceso de material en los extremos del núcleo combustible podría presentar puntos calientes, comportamiento no deseado dentro del reactor.

Este parámetro también influye en el aspecto de la zona de interdifusión. Un aumento en la temperatura de trabajo implica una mayor intercapa. No solo la temperatura, sino también al aumentar la fuerza de la laminadora se ve favorecido este fenómeno. Si bien la interdifusión puede colaborar a un correcto pegado entre los materiales, si es muy marcado puede dar lugar a acúmulos de alguno de los elementos. Si se forman acúmulos de Molibdeno se genera una zona enriquecida en el mismo, pero empobrecido en Uranio. De esta manera podría perderse la estructura gamma del combustible, afectando su comportamiento dentro del reactor. Más estudios son necesarios para afirmar estas hipótesis.

La ausencia de *gap* entre el núcleo y el marco (evitando así que gases permanezcan alojados dentro del conjunto) es esencial para obtener un

correcto pegado. En el caso de haber oxígeno presente, se forman óxidos que evitan la unión del UMo-Zry y Zry- Zry.

Mediante el análisis realizado puede concluirse que 650°C es una temperatura correcta de laminación dado que la intercapa de difusión, si bien existe, trabajando a fuerzas de laminación alta, no es tan marcada como a mayores temperaturas. Además, el *Dog Bone* observado se mantuvo por debajo del 5% con respecto al espesor del centro. Por último, es esencial no dejar espacio –donde pueden alojarse gases- entre el núcleo y el marco, para evitar así la oxidación de los materiales y obtener un correcto pegado.

Figuras y tablas

Muestra	650LF	650LF-2	650LF-G	650HF	650HF-G	700LF	750LF	800LF
Temperatura (°C)	650	650	650	650	650	700	760	800
Presión (MPa)	371-2394	371-2394	371-2394	4372-29152	4372-29152	371-2394	371-2394	371-2394
Núcleo	Sin gap	Sin gap	Con gap	Sin gap	Con gap	Sin gap	Sin gap	Sin gap

Tabla 1: condiciones experimentales de la laminación de cada una de las miniplacas estudiadas.

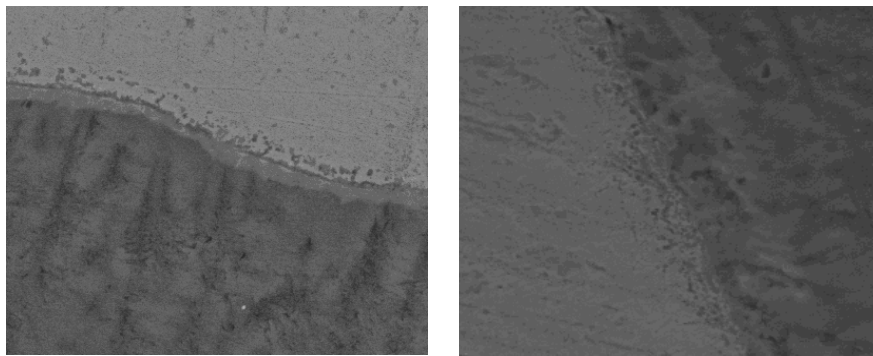


Fig.1: Imágenes obtenidas por SEM de las intercapas de difusión de las muestras: izq.: 650HF; der.: 650HF-G.

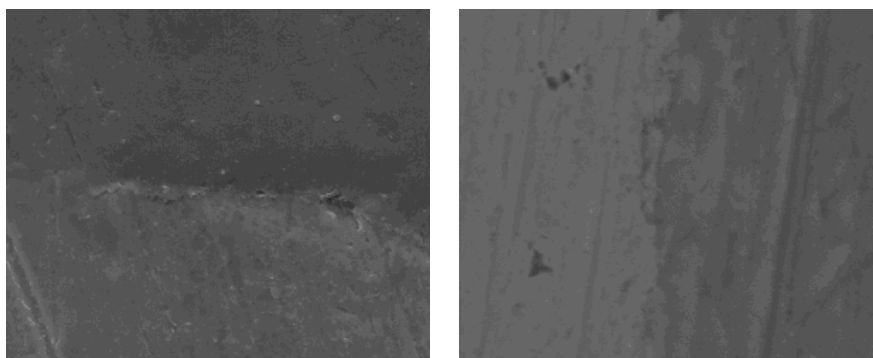


Fig.2: Imágenes obtenidas por SEM de las intercapas de difusión de las muestras: Izq.: 650LF; Der.: 650LF-G

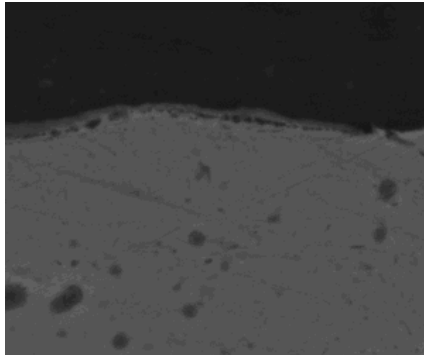


Fig.3: imagen obtenida por SEM de la muestra 650LF-2.

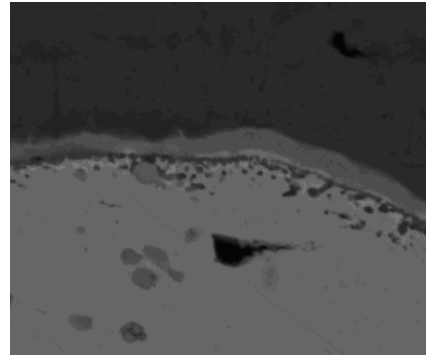


Fig.4: imagen obtenida por SEM de la muestra 700-LF.

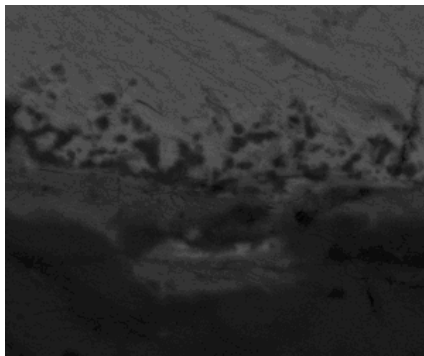


Fig.5: imagen obtenida por SEM de la muestra 750LF.

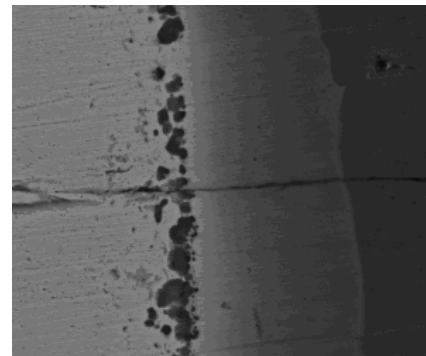


Fig.6: imagen obtenida por SEM de la muestra 800LF.

Temperatura	Extremo izquierdo – derecho (%)
650°C	1 - 9
700°C	27 - 38
750°C	29 - 42

Tabla 2: *Dog Bone* estimado mediante el método cualitativo del *Grey Value*. La diferencia entre el espesor de los extremos con respecto al del centro es mostrado en porcentaje.

Temperatura	Espesor		
	Centro (µm)	Extremo (µm)	Diferencia (%)
650°C	260,81	269,55	3
700°C	151,02	190,74	26
750°C	268,76	401,49	49

Tabla 3: *Dog bone* medido sobre las imágenes obtenidas por SEM. Todas las muestras fueron laminadas a una presión de la laminadora de 371-2394 MPa.

Referencias

- [1] Metastable phases in the uranium molybdenum system and their origin - K. Tangirū, G.I. Williams, Journal of Nuclear Materials Volume 4, Issue 2, July 1961, Pages 226–233
- [2] Observations in the Sequence of UMo Monolithic Miniplates Preparation - López, Marisol; Gonzalez, Alfredo; Taboada, Horacio - July, 2011 - ETDEWEB ID: 21449098
- [3] Update on US High Density Fuel Fabrication Development. C. R. Clark - G. A. Moore, J. F. Jue, B. H. Park, N. P. Hallinan, D. M. Wachs, D. E. Burkes – March 2007 – RRFM.
- [4] Zircaloy cladding mechanical properties, K. Hannerz, G. Vesterlund – Nuclear Engineer and Design, Volume 33, Issue 2, September 1975, Pages 205–218
- [5] M. Griffiths, Philosophical Magazine A 63 n° 5 (1991) 835-847
- [6] R. A. Johnson, Philosophical Magazine A 63 n° 5 (1991) 865-872.
- [7] A.G. Mikhin, Yu. N. Osetsky and V. G. Kapinos, Philosophical Magazine A 70 n° 1 (1994) 25-33.
- [8] A. M. Monti, A. Sarce, E. J. Savino, C. N. Tomé, Philosophical Magazine A 63 n° 5 (1991) 925-936