

## **TÍTULO: ESTUDIO DE OXIDACIÓN DE PLACAS DE ALUMINIO EN CONDICIONES DE TRANSFERENCIA TÉRMICA.**

**R. Haddad, A. Burkart y R. Amoruso**

Comisión Nacional de Energía Atómica (Argentina)

E-mail (autor de contacto): [haddad@cnea.gov.ar](mailto:haddad@cnea.gov.ar)

### **RESUMEN**

*En los combustibles nucleares de reactores experimentales tipo MTR (Material Test Reactor) el material nuclear se encuentra incluido dentro de una contención hecha con aleación de aluminio en forma de placa. El calor generado por la reacción nuclear es extraído por agua que circula enfriando la superficie metálica. En estas condiciones las aleaciones de aluminio se oxidan, creciendo una película que dificulta la transferencia térmica. Esto origina un incremento de la temperatura en la interfaz óxido-metal que da lugar a una aceleración de la oxidación, realimentando el proceso. En reactores de alto flujo, la alta potencia lineal disipada puede generar temperaturas suficientemente altas como para producir corrosión intergranular, con ampollado y descascamiento. En este punto las placas pueden perder su capacidad de contención, con la indeseable consecuencia de pérdida de material nuclear y productos de fisión.*

*Se presenta un enfoque experimental que simula las condiciones de transferencia térmica en placas de combustible nuclear de aluminio, con el objeto de predecir el comportamiento del sistema en una variedad de situaciones. Consiste esencialmente en un canal formado por dos placas paralelas de aluminio, fuera del cual circula un fluido calefactor, mientras que por dentro pasa agua destilada. De esta forma se pretende reproducir las condiciones de transferencia térmica existentes en el combustible en operación. El sistema está instrumentado para controlar y medir parámetros del proceso tales como: temperatura del fluido térmico, temperatura de entrada y de salida del refrigerante, caudal del mismo y temperaturas de las placas. Se muestran los resultados obtenidos en ensayos realizados en diferentes condiciones, comparándolos con las predicciones de las distintas correlaciones existentes en la literatura.*

### **Tópico 2: Materiales Metálicos**

**Palabras clave:** ALUMINIO - OXIDACIÓN - TRANSFERENCIA TÉRMICA - AGUA PURA

## 1. INTRODUCCIÓN

Los elementos combustibles MTR de aluminio se oxidan durante la operación de reactores nucleares experimentales, dependiendo de la potencia lineal generada, de las condiciones termo hidráulicas y de la química del refrigerante. En el diseño del combustible debe incluirse una previsión de espesor de óxido que resulte del orden o inferior a 25-50  $\mu\text{m}$  al fin del quemado. Para niveles más altos se presentan problemas de corrosión del aluminio, como ampollado, cambios dimensionales, desprendimiento de escamas del óxido, corrosión intergranular penetrante, perforación de las placas y consiguiente pérdida de la capacidad de contención de material nuclear y productos de fisión.

La predicción de crecimiento de óxido es muy compleja ya que requiere del conocimiento preciso de muchas variables: potencia lineal, caudal de refrigerante, temperaturas de entrada y salida y velocidad del mismo, conductividad y pH del agua, niveles de radiación, etc. Las correlaciones disponibles en la literatura [1-3] son sólo válidas en los rangos de variables en los que fueron obtenidas. La más reciente de las publicadas [3], si bien pretende ser elástica en cuanto a que es la que más variables incluye, es tan sensible a las variaciones que no resulta práctica para predecir una situación real, tal como se muestra en la Figura 1.

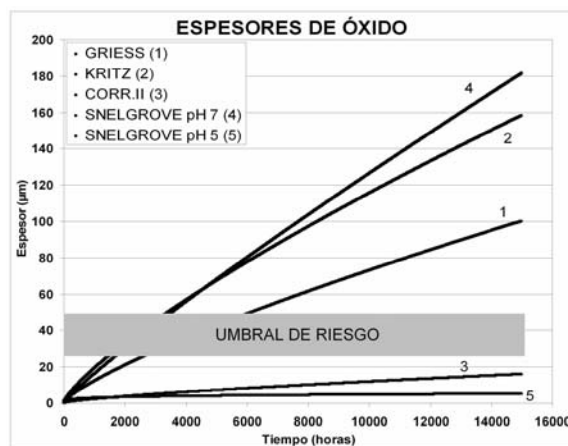


Figura 1: Comparación de la predicción de Kim-Snelgrove calculada a dos pH diferentes, con otras. Parámetros usados para este ejemplo: densidad de flujo de calor 2  $\text{MW/m}^2$ , velocidad de refrigerante 8 m/seg y temperatura de placa 104 °C.

Como se observa, al variar el pH entre 5 y 7, la predicción de Kim-Snelgrove barre todo el espectro de valores cubierto por las otras tres correlaciones consideradas, comprendiendo predicciones de oxidación superiores a las tolerables. Debe tenerse en cuenta que los cálculos presentados en la Figura 1 han sido hechos con parámetros similares a los correspondientes a un reactor de producción promedio, siendo que para reactores de mayor exigencia los valores de óxido serían mayores. Se infiere, por tanto que la operación de reactores de producción de cierta potencia debe incorporar en el diseño del combustible y/o de su uso, previsiones confiables sobre el crecimiento del óxido de aluminio en servicio.

Para generar una base de datos fidedigna, se construyó una facilidad que permite simular las condiciones térmicas e hidráulicas de las placas combustibles nucleares durante su funcionamiento en el reactor, con el objeto de medir el crecimiento del óxido en condiciones controladas de las variables que influyen en el fenómeno.

## 2. DISPOSICIÓN EXPERIMENTAL

Con el objeto de estudiar la oxidación de las placas combustibles de aluminio en operación, se construyó un sistema que simula la transferencia de calor por medio de un canal artificial, compuesto por dos placas de aleación de aluminio paralelas. Por el lado externo del canal las placas están en contacto con un fluido térmico caliente en circulación, mientras que por el interior fluye agua desmineralizada, que actúa como refrigerante, tal como se esquematiza en la Figura 2.

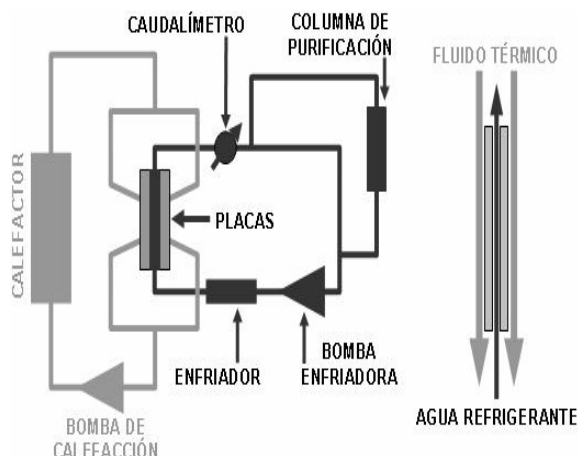


Figura 2: Esquema del circuito experimental. Izquierda, diagrama general; derecha, canal simulado. En color más claro se traza el circuito caliente, mientras que el refrigerante se muestra más oscuro.

La Figura 3 muestra vistas del sistema experimental y un detalle del dispositivo diseñado para contener las placas, armando el canal, que es el corazón del sistema.

El mismo está provisto de sensores para medir las variables más importantes del proceso: temperatura del fluido térmico, temperaturas de entrada y salida del refrigerante, caudal de éste último, presiones de admisión y salida de las bombas de fluido térmico y de agua, así como sensores de seguridad, para corte por bajo flujo, sobrepresión, etc. Una de las instrumentaciones fundamentales es la medición de la temperatura interna de las placas de aluminio, por medio de termocuplas insertadas en el espesor de las mismas.

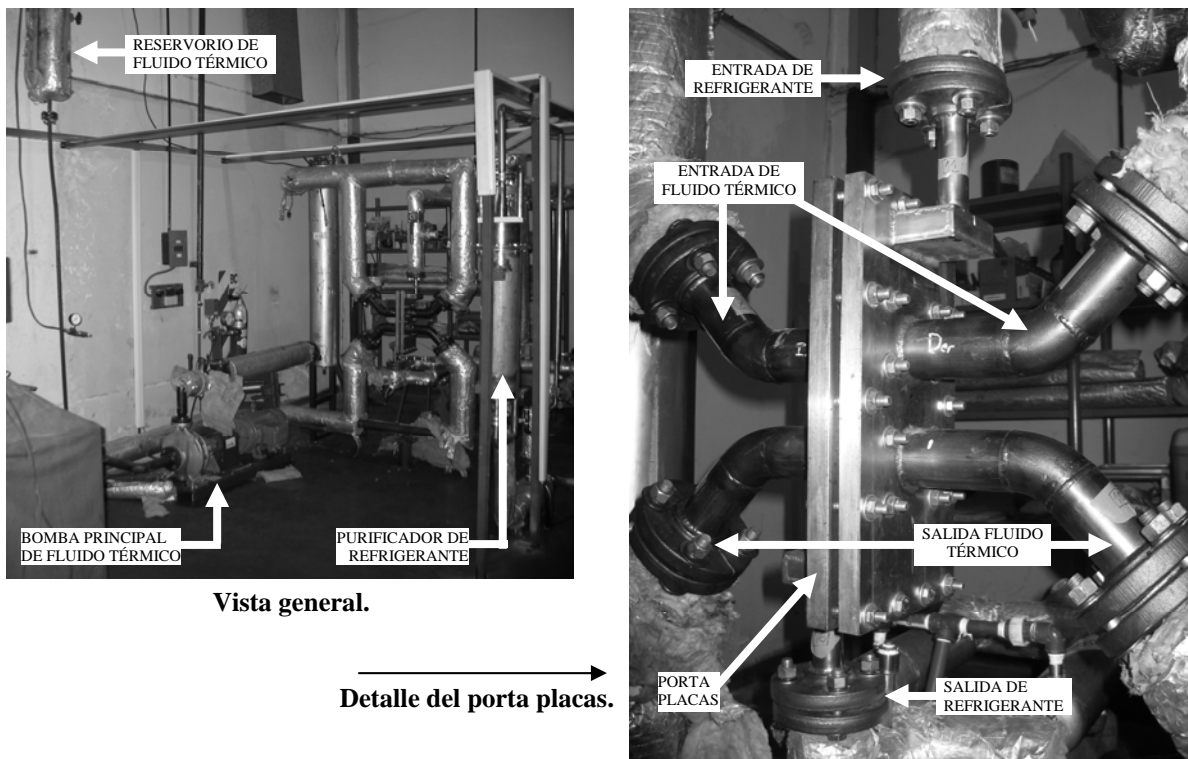


Figura 3: Dispositivo experimental.

Como se muestra en forma esquemática en la Figura 2, el refrigerante es purificado en forma continua, mediante una derivación del agua hacia un sistema de intercambio iónico de lecho mezclado. En la operación del sistema se contempla el monitoreo frecuente de las variables principales que controlan la calidad del agua: conductividad y pH.

Las placas sobre las que se efectuaron los experimentos fueron manufacturadas con aleación de aluminio 6061, utilizando la secuencia de fabricación habitual en placas combustibles. El tratamiento superficial final incluye un decapado en hidróxido de sodio a temperatura, posterior neutralización y enjuague. El canal de ensayo mide 31 cm de longitud, 1,57 in de ancho y 2,5 mm de espesor. El calor es transferido a través de una ventana central de 8 cm de largo por 4 cm de ancho. Con los datos geométricos y el caudal medido se puede calcular la velocidad a la que pasa el agua por el canal. Con el caudal y la diferencia de temperatura entre entrada y salida del agua se puede también conocer la cantidad de calor transmitida al refrigerante y -teniendo en cuenta el área de transferencia- la densidad de flujo calórico. Todos estos parámetros se pueden ajustar para que el régimen de transferencia de calor sea similar al de una placa combustible en funcionamiento en un reactor.

En cada ensayo se establecen condiciones constantes de operación en función del estado que se desea simular y se mantienen durante el período deseado. Al finalizar el mismo, se procede al desmontaje de las placas y la medición del óxido crecido, por medio de un sensor de corrientes parásitas. Se mide el espesor del óxido en toda la superficie expuesta al agua, con el objeto de confeccionar un mapa de distribución de espesores. En un ensayo se midió el espesor de óxido por medios destructivos (metalografía) con el objeto de comparar los resultados con los obtenidos mediante corrientes inducidas.

### 3. RESULTADOS

#### 3.1. Validación de la medición de espesores

La Figura 4 muestra el resultado de un relevamiento de espesores de óxido en la zona central de una probeta ensayada al sólo efecto de proceder a una calibración del método de corrientes parásitas. La dispersión observada, dentro del orden de  $\pm 1\mu\text{m}$ , corresponde al error de apreciación típico del equipo de medición. El promedio de las 10 mediciones es de  $5,15\mu\text{m}$ .

La Figura 5 muestra la sección transversal a la capa de óxido, pulida para poner en evidencia el espesor del mismo. Se observa una buena coincidencia entre lo observado -tanto por Microscopía Óptica como por Microscopía Electrónica de Barrido y lo medido con el sensor de corrientes parásitas.

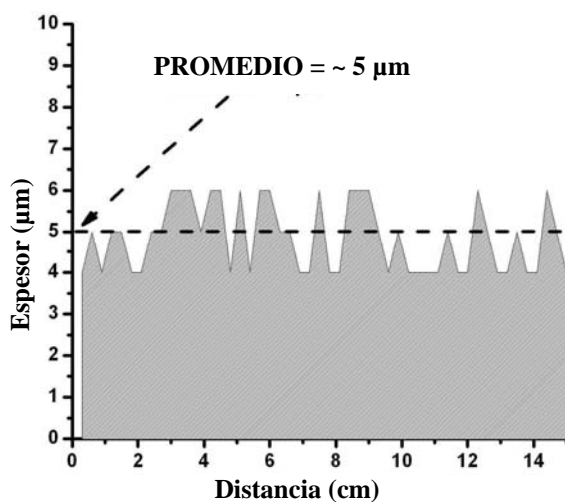


Figura 4: Histograma de determinaciones de espesor en plateau de oxidación.

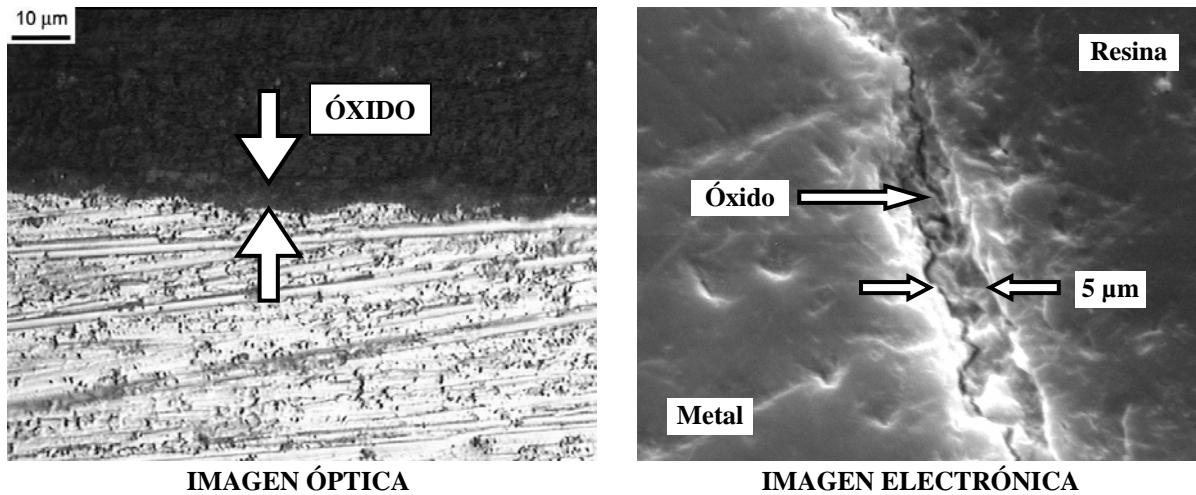


Figura 5: Sección metalográfica de la probeta de calibración de espesores.

### 3.2. Resultados preliminares

Se realizaron ensayos preliminares a 7, 14 y 36 días de duración, en las siguientes condiciones:

- Densidad de flujo calórico:  $2 \text{ MW/m}^2$
- Velocidad de refrigerante respecto a la superficie del canal: 8 m/seg
- Temperatura de entrada de refrigerante al canal:  $50 \text{ }^\circ\text{C}$  (en el seno del torrente)
- Temperatura de salida de refrigerante al canal:  $55 \text{ }^\circ\text{C}$  (en el seno del torrente)
- Temperatura del fluido térmico en el seno del torrente:  $168 \text{ }^\circ\text{C}$  (estimada)
- Temperatura de placa (en contacto con el agua):  $79 \text{ }^\circ\text{C}$

La conductividad y pH del agua fueron medidos dos veces por día, manteniéndose siempre en los siguientes valores:

$$\text{Conductividad: } < 1 \text{ } \mu\text{S/cm}$$

$$5,6 < \text{pH} < 5,8$$

La Tabla I muestra los valores obtenidos en las determinaciones efectuadas.

TABLA I: Crecimiento de óxido en función del tiempo de exposición.

Tiempo (días)	Espesor ( $\mu\text{m}$ )
5	5
10	9
20	14
36	20

La Figura 6 muestra la evolución temporal del grosor de la capa formada. Se observa un grosor de óxido creciente con el tiempo, con velocidad en disminución.

Dado lo reducido del tiempo de ensayo (máximo 36 días, equivalente a 864 horas), no se puede proceder a extrapolación a tiempos largos, como los expuestos en la Figura 1. Los valores medidos corresponden al segmento inicial de estas curvas y se encuentran dentro del rango de espesores calculados en las regresiones mostradas. Se observa una inconsistencia entre la temperatura de placa medida y la prevista para las condiciones de ensayo, ya que el valor calculado era de  $104 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  más alta. Esto puede deberse a ineficiencia en la transferencia calórica del fluido térmico a las placas de aluminio y/o a pérdidas de calor por conducción, que deben ser evaluadas.

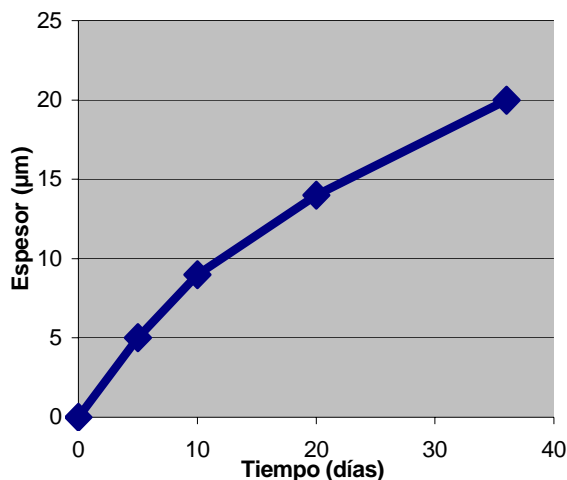


Figura 6: Evolución del espesor de óxido en función del tiempo en los ensayos realizados.

#### 4. DISCUSIÓN Y CONCLUSIONES

El sistema experimental construido es capaz de producir transferencia de calor a través de placas de aluminio entre una superficie caliente y un flujo de agua refrigerante, simulando así la situación en combustibles de un reactor experimental en operación. Se pueden controlar y registrar varios parámetros en tiempo real y se puede trabajar en condiciones de operación correspondientes a reactores de distinta característica y en regímenes diferentes.

Estas características convierten al sistema en una herramienta de potencial utilidad para producir los datos necesarios para generar las correlaciones usadas para predecir el comportamiento del combustible, especialmente, en reactores de alta potencia, donde el crecimiento acelerado de óxido puede traer aparejado consecuencias indeseables.

Asimismo, se puede evaluar el efecto de diversas condiciones químicas del agua, como el efecto de excursiones en parámetros típicos del agua tales como conductividad, pH, contenido de iones, etc. Adicionalmente, se puede medir el rendimiento de un amplio rango de materiales en forma comparativa, como, por ejemplo, distintas aleaciones de aluminio, recubrimientos, tratamientos superficiales, etc.

Los resultados obtenidos hasta el presente sólo pueden ser tomados como preliminares, en virtud de lo reducido del tiempo de exposición en comparación con el tiempo real de quemado de los combustibles. Asimismo, hay aún algunas condiciones experimentales que sería deseable mejorar, tales como la medición de temperatura de placa y la eficiencia de transferencia térmica entre el fluido térmico y las placas de aluminio. Debe también calcularse la posibilidad de pérdida de calor por conducción a lo largo de las placas. Sin embargo, se entiende que el arreglo experimental es eficaz para realizar ensayos comparativos.

La determinación de espesores mediante sonda de corrientes parásitas ha sido validada mediante la medición directa de los valores mediante métodos metalográficos.

#### 5. AGRADECIMIENTOS

Los autores desean expresar su agradecimiento a la empresa INVAP por proveer una parte importante de la ingeniería del sistema, al personal del Depto. Combustibles Nucleares de CNEA por la atención de la facilidad experimental 24 horas diarias, a los Deptos. Materiales y Combustibles nucleares de CNEA por la financiación parcial del proyecto y a los profesionales de las áreas de Combustibles Nucleares, Materiales, Termohidráulica y Reactores Nucleares, de los Centros Atómicos Constituyentes y Bariloche por su colaboración.

#### REFERENCIAS

- [1] J. C. Griess et al., ORNL-3541 (1964).
- [2] S. J. Pawel et al., ORNL/TM-13083 (1995).
- [3] Yeon Soo Kin et al, RERTR 2003, Chicago (Illinois), October 5-10 (2003).