

MONTAGNE R., MENY L.

Rapport CEA 784.

Coextrusion appliquée à la réalisation d'éléments combustibles massifs ou dispersés.

Sommaire. — Dans ce mémoire est décrit, en première partie, un procédé d'obtention d'éléments combustibles pour réacteurs atomiques.

Un contact aussi bon que possible est réalisé entre le combustible et la gaine grâce au filage simultané des deux éléments. Une véritable soudure est ainsi réalisée entre les deux métaux. Celle-ci peut ensuite être améliorée par un traitement thermique provoquant une diffusion. Les essais effectués sur ces éléments coextrudés sont décrits dans cet article.

Dans une deuxième partie, la fabrication d'éléments combustibles dispersés est étudiée, avec un alliage uranium-aluminium à 30 pour cent en poids d'uranium, valable pour un enrichissement de l'uranium de 20 pour cent.

Les dimensions des éléments combustibles ont été fixées à :

| | |
|-------------------------|--------|
| diamètre extérieur : | 30 mm |
| diamètre intérieur : | 24 mm |
| longueur du noyau : | 300 mm |
| épaisseur de la gaine : | 0,4 mm |

La méthode de fabrication est le pressage dans un pot en aluminium du mélange de poudres d'uranium et d'aluminium et l'extrusion à 500 °C. Une extrémité est gainée directement par extrusion, l'autre par soudure d'un bouchon.

Les résultats des premiers essais sont décrits.

1958

33 pages

MONTAGNE R., MENY L.

Report CEA 784.

Coextrusion applied to the construction of fuel elements in solid or powder form.

Summary. — In this issue is described, in the first part, a realization process of fuel elements for nuclear reactors.

A contact as good as possible is achieved between the fuel and the can by both elements simultaneous extrusion. In this way a real weld is worked out between the two metals. This weld can be improved by a thermal treatment that brings a diffusion. In this article are described the tests carried out on these coextruded elements.

In the second part, the fabrication of dispersed fuel elements is studied: a 30 per cent weight U uranium-aluminium alloy is used, valuable with 20 per cent enriched uranium.

The dimensions of the fuel element have been fixed at :

| | |
|------------------------|--------|
| external diameter : | 30 mm |
| internal diameter : | 24 mm |
| length of the core : | 300 mm |
| thickness of the can : | 0,4 mm |

The method of fabrication is pressing of the mixed uranium and aluminium powders in an aluminium can, and extrusion at 500 °C; one end is directly canned by extrusion the other by welding of an aluminium plug.

The results of the first test are described.

1958

33 pages

PRÉSIDENCE DU CONSEIL
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

La coextrusion appliquée à la réalisation
d'éléments combustibles massifs
ou dispersés

par

R. MONTAGNE et L. MENY

Rapport CEA n° **784**

CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY
SERVICE DE DOCUMENTATION
Boite postale n° 2 - Gif-sur-Yvette (S.-et-O.)

**ATOMIC ENERGY COMMISSION
COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE**

**SYMPOSIUM TECHNIQUE
SUR LES ELEMENTS COMBUSTIBLES**

Paris, 18-23 novembre 1957

Communication de M. R. MONTAGNE et Mme L. MENY
du
Commissariat à l'Energie atomique
69, rue de Varenne
PARIS 7^e**

Sujet : LA COEXTRUSION APPLIQUEE A LA REALISATION D'ELEMENTS
COMBUSTIBLES MASSIFS OU DISPERSES**

- 1ère P A R T I E -

Les ELEMENTS COMBUSTIBLES. URANIUM GAINÉ de ZIRCONIUM,
OBTENUS par COEXTRUSION.

I - INTRODUCTION.

1°/ PROBLEME POSE :

Le Département de Métallurgie et de Chimie Appliquée du Commissariat à l'Energie Atomique a été conduit à l'étude d'un élément combustible pour réacteurs à haut flux thermique, et refroidis par eau pressurisée. Le métal de gaine tout indiqué pour un tel réacteur étant le Zirconium, il a fallu envisager une méthode de gainage du combustible susceptible d'assurer un bon contact thermique entre celui-ci et la gaine.

.../...

2°/ DIFFICULTES PARTICULIERES :

Les méthodes de gainage habituelles,

- soit mécaniques, par filière,

- soit hydrauliques, par pression de liquide,

risquent de ne pas donner satisfaction.

En effet, par ces deux méthodes la gaine est simplement appliquée sur le combustible, par écrasement. Le contact thermique entre la gaine et le combustible peut être insuffisant du fait du haut flux thermique à transmettre, avec un faible gradient de température entre le combustible et le fluide de refroidissement.

En effet, celui-ci étant de l'eau pressurisée, sa température sera élevée.

II - PRINCIPE de la METHODE.

Nous avons donc cherché à obtenir un contact plus intime entre les deux éléments en réalisant une soudure.

.../...

Ceci présente, en outre, l'avantage de limiter la zone de contact entre le combustible et le fluide de refroidissement, dans le cas de percement accidentel de la gaine.

La soudure est obtenue par le procédé dit de "Coextrusion". Il consiste à filer simultanément le combustible et sa gaine.

Cette tâche a été confiée à Mr. Sauve, Ingénieur au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.

Mr. Buffet, Ingénieur au "Comptoir Industriel d'Etirage et de Profilage des Métaux", a été chargé de la mise en oeuvre des filages par le procédé "Ugine-Séjournet".

III - DESCRIPTION des OPERATIONS.

1°/ OBTENTION de la BILLETTE COMPOSITE :

Nous décrirons ici l'un des essais de coextrusion que nous avons tentés.

.../...

Nous avons réalisé une billette composite conforme au schéma suivant (voir Figure 1) :

Une billette d'alliage Uranium-Zirconium est fondue sous vide. Le taux de Zirconium est de 1 à 2 %. Cette billette a une forme cylindrique et se termine à l'avant par une partie hémisphérique. La billette est introduite, très ajustée, dans un pot en Zirconium de même forme. Nous évitons ainsi d'emprisonner de l'air susceptible d'oxyder l'Uranium.

Le tout est coiffé par une chemise cylindrique en Cuivre repoussé. Cette chemise a pour but :

- a) de protéger le Zirconium de toute pollution pendant les opérations de chauffe et de filage,
- b) d'éviter le contact du pot de Zirconium chaud avec le container froid.

La billette d'alliage Uranium-Zirconium est prolongée par un cône, également en alliage Uranium-Zirconium, destiné à éviter les rentrées de Cuivre dans l'élément filé.

Le cône est, à son tour, coiffé par une pièce en Bronze dur sur laquelle est appliqué l'effort du fouloir de la presse.

L'étanchéité de la douille de Cuivre est assurée, à l'arrière, par une plaque de Cuivre soudée.

2°/ OBTENTION du POT de ZIRCONIUM :

L'élément le plus délicat à réaliser fut le pot en Zirconium. Etant donnée l'analogie du problème, nous nous sommes adressés à un fabricant de douilles d'obus, les Etablissements Luchaire.

Partant de billettes de Zirconium de diamètre : 120mm, et de hauteur : 60mm, nous procédâmes à deux extrusions par le procédé Ugine-Séjournet. Nous avons obtenu des pots de

- hauteur : 250 mm environ
- diamètre extérieur : 92 mm
- épaisseur : 4 à 4,5 mm

(voir Figure 2).

La première opération se fait en matrice ouverte.

Aiguille et container sont fixes.

Le fouloir d'une presse Morane de 350 tonnes pousse la billette entre l'aiguille et le container.

.../...

Le produit filé sort sous le container.

Par des vérins, on dégage ensuite celui-ci.

La billette de Zirconium avait été préalablement chauffée au four à bain de sel Holden à la température de 750°C.

La deuxième opération consiste en une passe d'allongement effectuée sur une presse mécanique Schuler de 800 tonnes. (Voir Figure 3).

3°/ COEXTRUSION :

Avant montage, la billette d'alliage Uranium-Zirconium et le pot de Zirconium sont soigneusement nettoyés, sablés et traités dans un four sous vide à 400°C.

La soudure finale de la plaque arrière en Cuivre est effectuée à l'argonarc.

La billette composite ainsi obtenue est chauffée à 620°C dans un four à bain de sel Holden, puis filée par le procédé Ugine-Séjournet sur une presse horizontale Morane de 1500 tonnes. La durée de l'opération de filage est de : 1 à 3 secondes.

La résistance à la déformation du métal que fait apparaître la pression de filage est de 25 à 30 kg/mm².

Le produit coextrudé obtenu a un diamètre extérieur de : 28 mm.

L'épaisseur de la gaine de Zirconium est de : 1 mm environ.

IV - RESULTATS.

Examinons les résultats obtenus.

1°/ ANALYSE RADIOCRISTALLOGRAPHIQUE. - MICROSCOPIE ELECTRONIQUE.

Des échantillons d'éléments coextrudés ont été confiés à Mr. Winogradski, chargé au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay des études radiocristallographiques et de la microscopie électronique.

Du point de vue "Mécanique", la liaison entre la gaine et le barreau est excellente.

On n'arrive que rarement et avec difficulté à décoller la gaine du barreau. (Voir Figure 4).

Les micrographies optiques montrent que la couche de contact est très mince. (Voir Figure 5).

Les micrographies électroniques montrent que l'épaisseur de cette couche de contact est de 1 μ seulement. Le profil de cette couche est irrégulier.

Des analyses radiocristallographiques ont été effectuées, en particulier sur les éléments de gaines et de barreaux qui ont pu être décollés.

La couche de contact des barreaux contient la phase δ du système Uranium-Zirconium. Il y aurait donc début de diffusion Uranium-Zirconium au cours de la coextrusion.

Préalablement, des essais de diffusion avaient été effectués par contact de pastilles de Zirconium et d'alliage Uranium-Zirconium, chauffées à 600°C. Nous avons constaté la formation de la phase δ du système Uranium-Zirconium.

.../...

2°/ INFLUENCE des TRAITEMENTS THERMIQUES
sur la COUCHE de CONTACT.

Nous avons fait quelques essais de traitements thermiques sur des éléments coextrudés, à des températures différentes et pendant des temps différents, pour étudier l'influence de ces traitements sur la couche de contact.

Le problème est complexe, du fait de l'existence de 3 phases solides pour l'Uranium et de 2 phases solides pour le Zirconium.

Nous avons constaté qu'après traitement à 600°C la liaison devient plus fragile.

Mais si on traite ensuite l'échantillon à 900°C la fragilité disparaît.

A titre d'exemple, citons le traitement à 900°C pendant 60 heures. Nous constatons une augmentation énorme de l'épaisseur de la couche de contact. Cette épaisseur atteint 0,6 mm environ.

Nous apercevons, d'ailleurs, plusieurs couches superposées d'aspects différents. (Voir Figure 6).

L'analyse radiocristallographique a révélé que la phase δ du système Uranium-Zirconium est toujours présente, mais que sa répartition dans la couche de diffusion n'est pas uniforme. Il existe une couche particulièrement riche en phase δ , dont l'épaisseur est : 0,2 mm environ.

3°/ ANALYSE MICROGRAPHIQUE.

Madame Laniesse, Ingénieur au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, a procédé à l'analyse micrographique de la gaine et du combustible.

La gaine est recristallisée en grains fins, d'épaisseur comprise entre 2 μ et 10 μ . (Voir Figure 7).

Le combustible est recristallisé. (Voir Figure 8). A l'interface les grains sont fins. Leur dimension est d'environ 3 μ .

Par contre, au centre les grains sont plus gros. Leur dimension est de 10 à 15 μ . (Voir Figure 9).

.../...

Sur certains échantillons (Voir Figure 10) la dimension des grains atteint 80 μ et même à 600 μ . On constate alors une orientation des grains dans la direction du filage. La variation importante de la grosseur des grains peut provenir des conditions de filage qui, au cours des premiers essais, n'ont pu être suffisamment définies.

4°/ ESSAIS de CYCLAGE THERMIQUES des ELEMENTS EXTRUDES.

Mr. Thomé, Ingénieur au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, a fait subir à des éléments de 210 mm de longueur, bruts de filage, 2000 cycles thermiques entre 20°C et 520°C. Le refroidissement s'effectuait dans un courant d'air. On observe un raccourcissement de l'élément, de 6 à 11 %, après ce traitement. Au cours des cyclages thermiques d'éléments combustibles, il est inhabituel d'observer un raccourcissement. La gaine suit les déformations du barreau, ce qui prouve la bonne liaison mécanique entre combustible et gaine.

Un traitement thermique β nous semble nécessaire, dans le cas d'emploi de tels éléments combustibles, du fait des déformations constatées au cours des cyclages thermiques.

5°/ ESSAIS de TRACTION.

Mr. Boudouresques, Ingénieur au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, a effectué deux essais de traction sur des éléments coextrudés, avec une presse de 25 tonnes.

Le premier essai, exécuté à froid, n'a pu aboutir à la rupture, la presse étant trop faible.

Le deuxième essai fut effectué à 400°C sur un élément de longueur 260 mm.

La charge de rupture fut de : 37,2 kg/mm².

L'allongement à la rupture fut de : 19 %.

La striction à la rupture fut de 64 %.

La cassure effectuée au milieu de l'élément montre qu'il n'y a aucune discontinuité entre la gaine et le combustible. (Voir Figure 11).

.../...

V - CONCLUSION.

En conclusion, je dirai que nos essais se poursuivent, mais que, d'ores et déjà, ce procédé de gainage nous semble particulièrement intéressant.

- IIème P A R T I E -

ELEMENTS COMBUSTIBLES DISPENSES.

Nous avons envisagé la réalisation d'éléments combustibles dispersés, constitués par un noyau d'alliage U-Al gainé extérieurement et intérieurement d'Aluminium. L'utilisation d'Uranium enrichi à 20 % a été prévue avec une teneur de 30 % en poids.

Nous allons décrire les résultats obtenus sur une première série d'éléments préparés avec de l'Uranium naturel pour en déterminer les conditions de fabrication et les propriétés autres que les propriétés nucléaires. Les essais ont été faits en collaboration avec le centre de recherches d'Antony des Tréfileries et Laminoirs du Havre au titre d'un contrat d'étude.

Pour cette première série d'éléments, les dimensions suivantes ont été fixées :

- longueur du noyau : 300 mm
- diamètre extérieur du tube : 30 mm
- diamètre intérieur du tube : 24 mm
- épaisseur de la gaine intérieure et extérieure : 4/10 mm.

.../...

La structure désirée est une dispersion homogène de particules arrondies d' UAl_4 dans une matrice d'Aluminium (43,5 % pds d' UAl_4).

Les tubes obtenus ont été contrôlés par radiographie et micrographie.

I - PREPARATION de l'ALLIAGE.

L'obtention de l'alliage U-Al par fusion a été jusqu'à présent écartée. Il est très difficile d'obtenir simultanément une homogénéité et une structure convenables. ⁽¹⁾

Par métallurgie des poudres, il y a plusieurs possibilités :

- mélange de poudre d' UAl_4 et de poudre d'Al
- mélange de poudre d'U et de poudre d'Al, et formation de l' UAl_4 avant ou pendant l'extrusion. Ces trois méthodes ont été suivies.

La poudre d'Al utilisée est de la poudre lamellaire de 8/1 d'épaisseur, contenant moins de 4 % d'oxyde. Elle a été choisie pour ses propriétés mécaniques satisfaisantes à chaud, la faible teneur en oxyde et l'épaisseur des lamelles garantissant cependant une certaine capacité de déformation.

La poudre d' UAl_4 a été préparée :

- par fusion sous vide du composé
- par diffusion sous vide à l'état solide d'un mélange stoechiométrique de poudres U+Al. La diffusion se fait rapidement vers $620^\circ C$, avec réaction exothermique très facile à mettre en évidence. Avec un peu d'Aluminium en excès, nous n'avons jamais constaté d'arrêt aux composés UAl_2 ou UAl_3 pendant la diffusion. Le composé obtenu, bien que pyrophorique, est facilement broyé et ramisé.

D'autres essais ont été faits par diffusion à l'état solide dans le mélange définitif des poudres U+Al comprimées, immédiatement avant l'extrusion (ou pendant). La granulométrie des particules d' UAl_4 formées, proportionnelle à celle de la poudre d'Uranium, est alors très facilement contrôlable. Cette méthode est la plus rapide, puisqu'elle réduit au maximum la manipulation de poudre.

II - FABRICATION des ELEMENTS.

Les éléments ont été obtenus par "frittage extrusion" du mélange de poudres, à l'intérieur d'une boîte d'Aluminium. Tous les essais ont été faits sur une presse verticale de 150 t. La fabrication de chaque élément comporte plusieurs opérations :

.../...

1) Préparation de la "boîte" (schéma de l'ensemble, voir Figure 12).

Les caractéristiques géométriques ont été déterminées de façon à obtenir une gaine d'épaisseur régulière, et un noyau tubulaire présentant une extrémité peu effilée au début de filage. Le rapport de filage $\frac{S}{s}$ doit être suffisant pour assurer un bon soudage des différentes particules entre elles, ce qui détermine les dimensions de la boîte.

2) Compression à froid du mélange de poudre dans la boîte.

3) Pose du couvercle.

Le couvercle est constitué par une rondelle d'Aluminium coulé serti sous pression dans la boîte. Une variante intéressante consiste à remplacer la rondelle d'Aluminium par de la poudre d'Aluminium oxydée. Le choix de la granulométrie influe sur les caractéristiques d'écoulement.

4) Extrusion.

La boîte fermée préchauffée à 500°C est filée à la même température entre une filière et une aiguille solidaire du poussoir. La régularité de l'épaisseur de la gaine dépend du profil de la filière et de la forme du raccord entre l'aiguille et le poussoir.

Un centrage parfait de l'aiguille et une bonne lubrification sont nécessaires pour obtenir la planéité de l'extrémité du noyau au début de filage. (Schéma du tube extrudé obtenu : voir Figure 13)

III - RESULTATS.

Un contrôle non destructif de la géométrie des tubes a été effectué par radiographie, pour vérifier l'épaisseur de la gaine, et pour s'assurer de la forme du noyau en début de filage. (Voir Figure 14)

L'épaisseur de la gaine obtenue est $\frac{4}{10}$ mm. Pour étudier les variations d'épaisseur, on a mesuré d'une manière systématique sur 25 barreaux la périodicité et l'amplitude des accidents au contact noyau-gaine. Les mesures sont en cours.

La forme du noyau en début de filage est très satisfaisante : L'extrémité très arrondie permet de garder le gainage obtenu directement par extrusion, ce qui évite la soudure d'un bouchon. (Figure 15) Pour l'autre extrémité, il est plus facile de couper à longueur désirée et de souder un bouchon en Al en forme de couronne. (Figure 16)

.../...

La structure obtenue est une dispersion de particules d' UAl_4 dans l'Aluminium. La première micrographie montre la structure obtenue à partir de poudre d' UAl_4 tamisat 325 : ϕ 43 μ . (Figure 17) Les deux autres montrent la structure obtenue à partir de poudre d'Uranium : (Figures 18 et 19)

$U \phi < 43 \mu$ donne $UAl_4 \phi < 66 \mu$

Dans tous les cas, la porosité et la teneur en oxyde sont très faibles. Le contact noyau-gaine est parfait. (Figure 20)

Nous avons fait différents essais sur ces tubes :

- un traitement de 100h à 500°C n'a pas d'influence sur la structure,
- des essais de cyclage thermique (20-520°C ; un cycle en une heure) sont actuellement en cours,
- des essais mécaniques de traction, de flambage et de compression de 20 à 500°C sont en cours.

.../...

IV - CONCLUSION.

Les essais ont vérifié la possibilité de fabriquer par coextrusion des tubes d'alliage U-Al à 30 % U en poids, gainé intérieurement et extérieurement d'Aluminium. L'emploi des poudres permet le contrôle exact de la structure du noyau et évite des opérations d'usinage. La méthode employée est rapide et permet d'obtenir des tolérances tout à fait satisfaisantes.

Pour la première série d'essais, les dimensions ont été fixées à 300 mm de longueur, 30 mm de diamètre extérieur, 3 mm d'épaisseur totale comprenant deux gaines de $\frac{4}{10}$ mm. Il n'y a aucune limitation de longueur, de diamètre ou d'épaisseur, autre que celle provenant de la puissance de la presse.

Bien entendu, cette méthode est également applicable à d'autres composés d'Uranium, à d'autres métaux de matrices et de gaines.

- Références Bibliographiques -

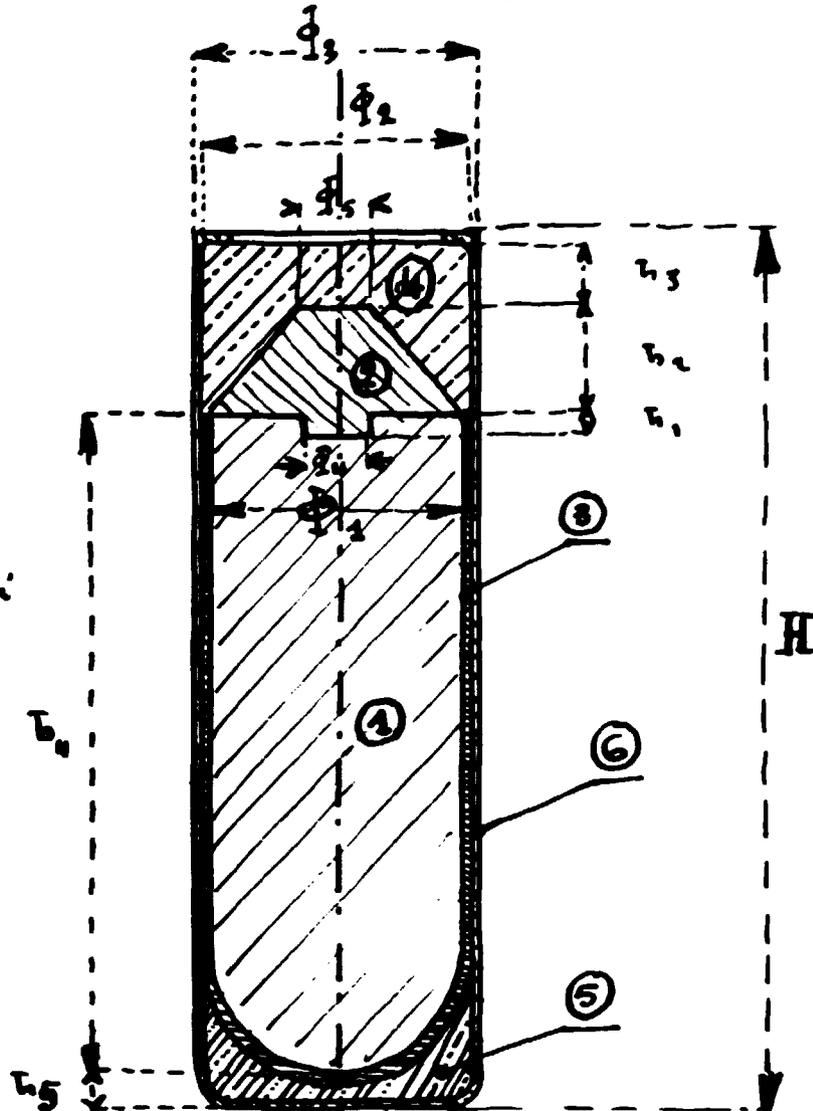
- (1) **W.L. LARSON et J.L. KLEIN**
Use of a chip method to produce homogenous
Al-U Alloy foil.
NMI - 1168 - 27 Décembre 1956
- (2) **J. BOGHEN et J. HERENGUEL**
Influence de la structure sur les propriétés
mécaniques et les conditions d'oxydation ano-
dique des demi-produits en Al oxydé et fritté.
REVUE d'ALUMINIUM - n° 227, t 32,
pp 1117 à 1124 - Décembre 1955.

DMGA
TECHNOLOGIE
Transformation
des Métaux

CARTOUCHE COMPOSITE U-ZR
avant fileç.

Légende

- ① Uranium brut
- ② Uranium raffiné
- ③ Zirconium
- ④ Bronze usiné
- ⑤ Cuivre rouge usiné
- ⑥ Cuivre rouge usiné ou sloopé-bruni



$$\frac{\Phi_2}{\Phi_1} \approx .83$$

$$\frac{\Phi_2 - \Phi_1}{2} = 4.25$$

$$\frac{\Phi_3 - \Phi_1}{2} = 1$$

$$\left\{ \begin{array}{l} h_1 = 10 \\ h_2 = 30 \\ h_3 = 20 \end{array} \right.$$

$$h_4 = 10$$

$$h_4 = 222 \text{ à } 317 \text{ selon les douilles.}$$

$$h_5 = 3$$

H compris entre 270 et 370

FIG. 1

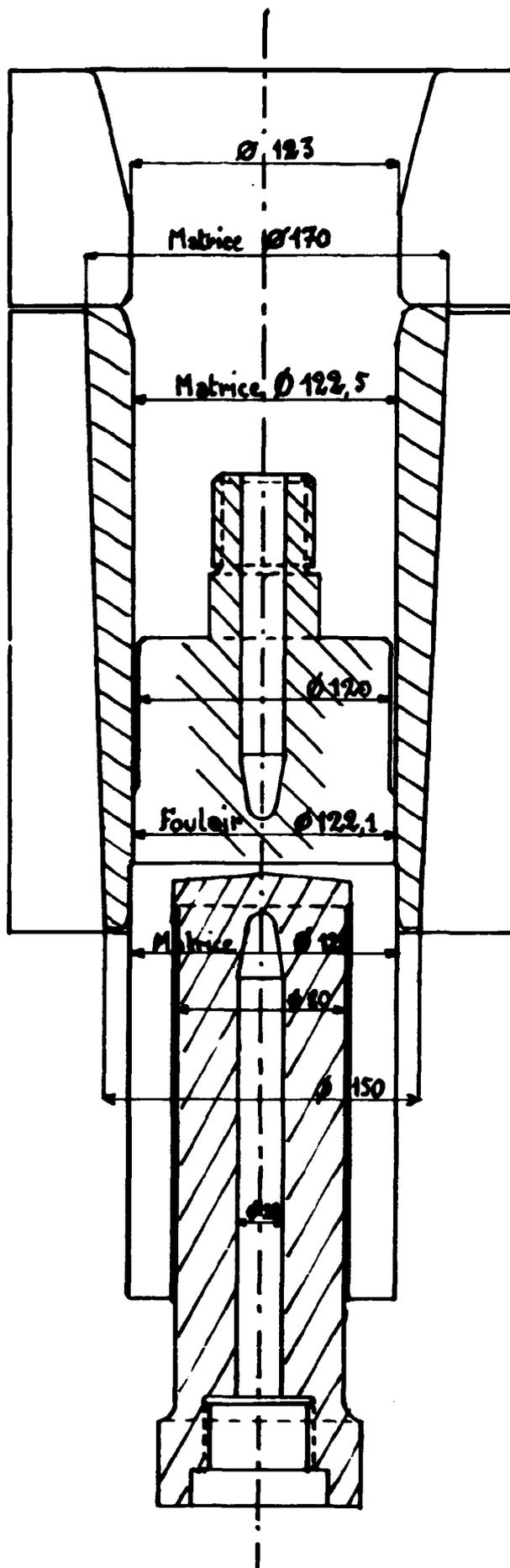


FIG. 2

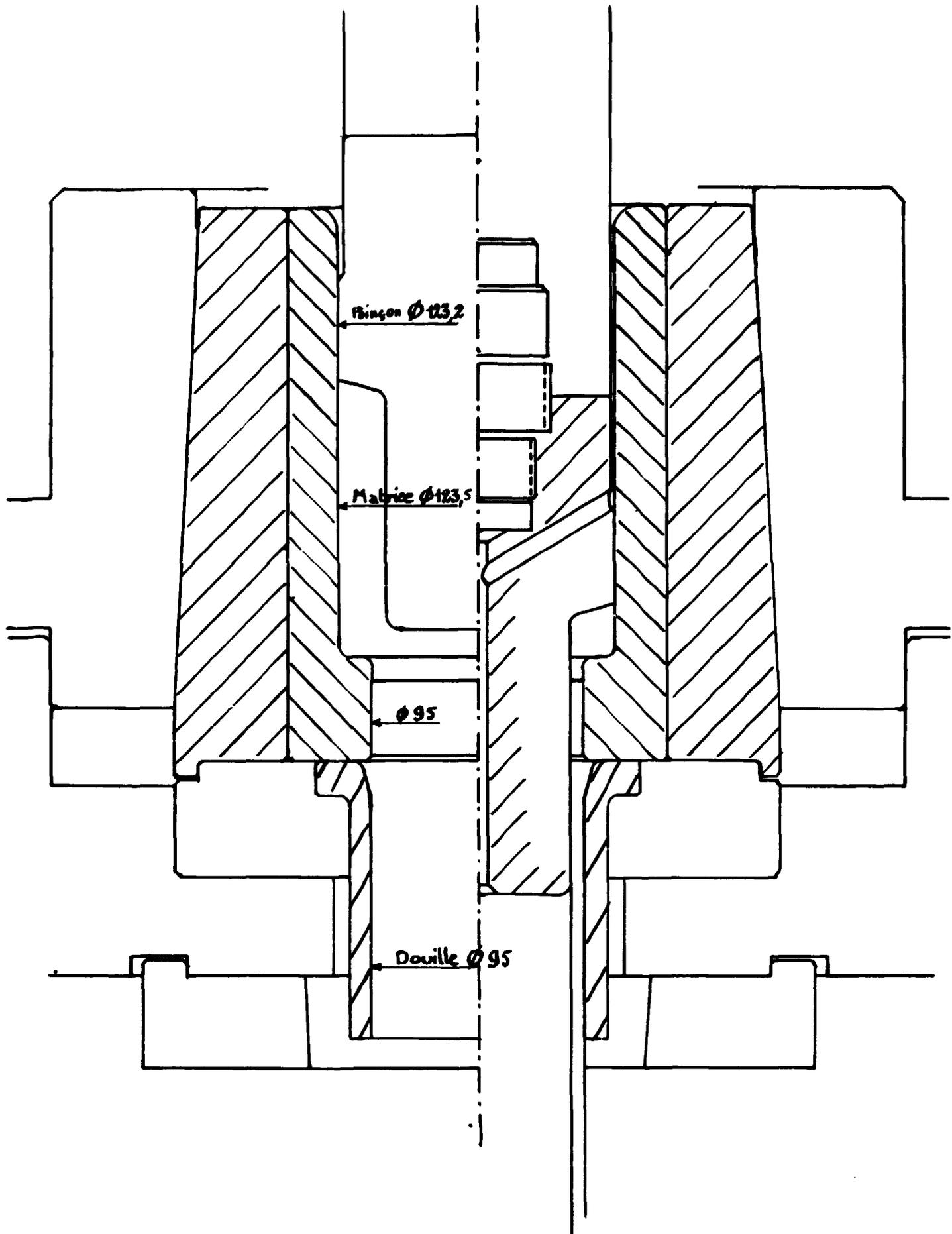


FIG. 3



gaine Zr

U-Zr

x 150, lumière polarisée.

- Figure 4 -



- Figure 5 -



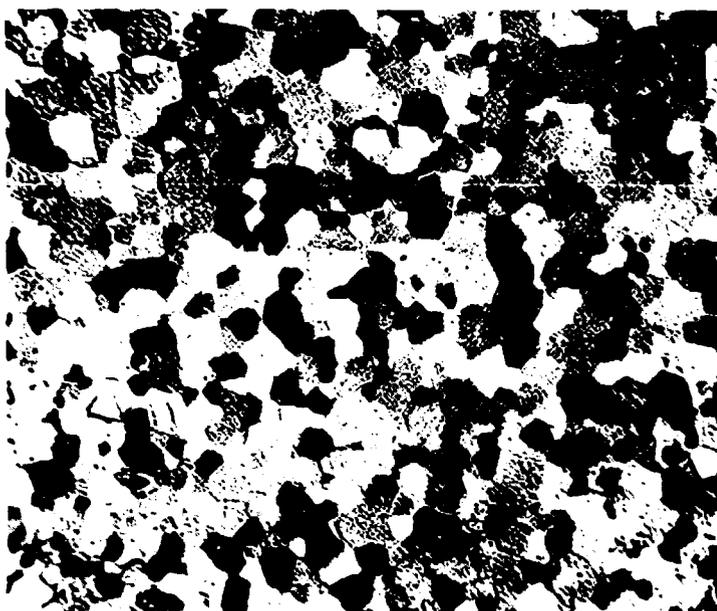
x 150 ; lumière polarisée.

gaine Zr

0,23 mm

U-Zr

- Figure 6 -



x 450 ; lumière polarisée

gaine Zr

- Figure 7 -

Direction de filage



Zr

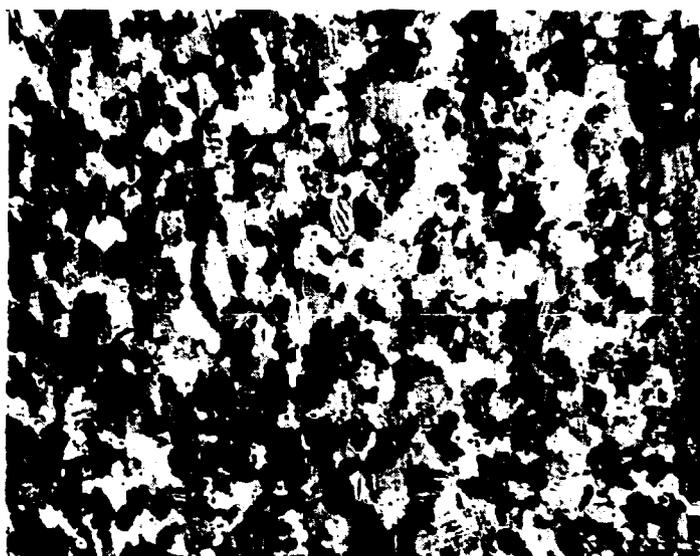
MILIEU DE FILAGE

U-Zr

x 150 ; lumière polarisée

- Figure 8 -

Direction de filage

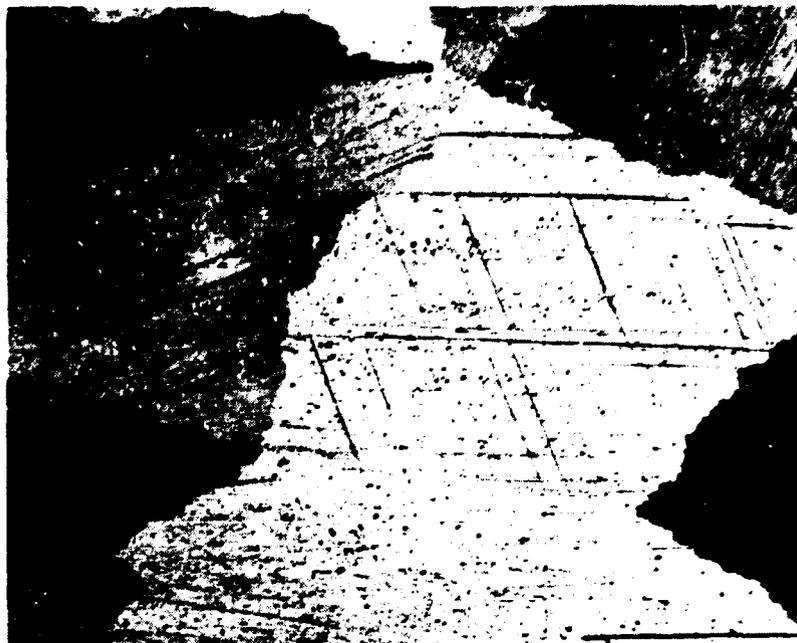


MILIEU DE FILAGE
(centre)

x 150 ; lumière polarisée

- Figure 9 -

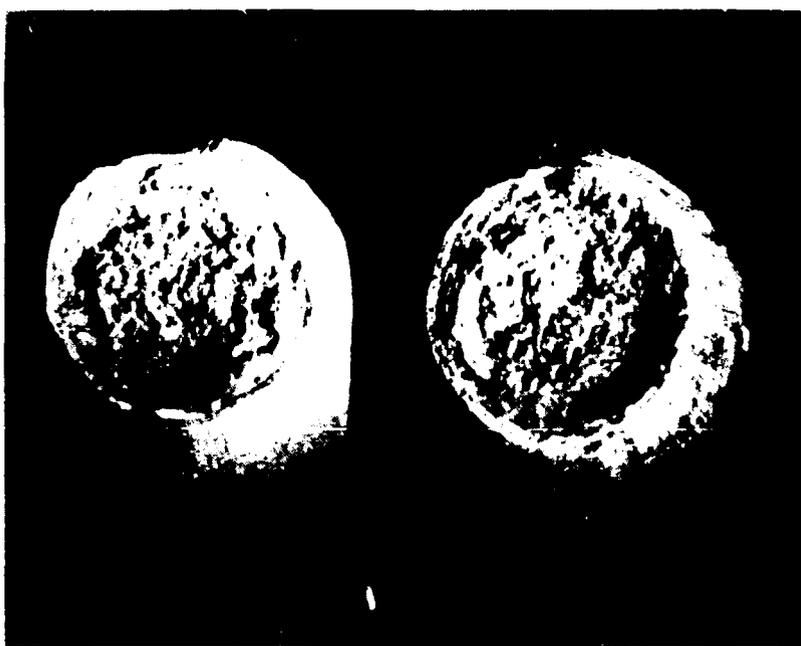
Direction de filage



U-Zr

x 150 ; lumière polarisée.

- Figure 10 -



- Figure 11 -

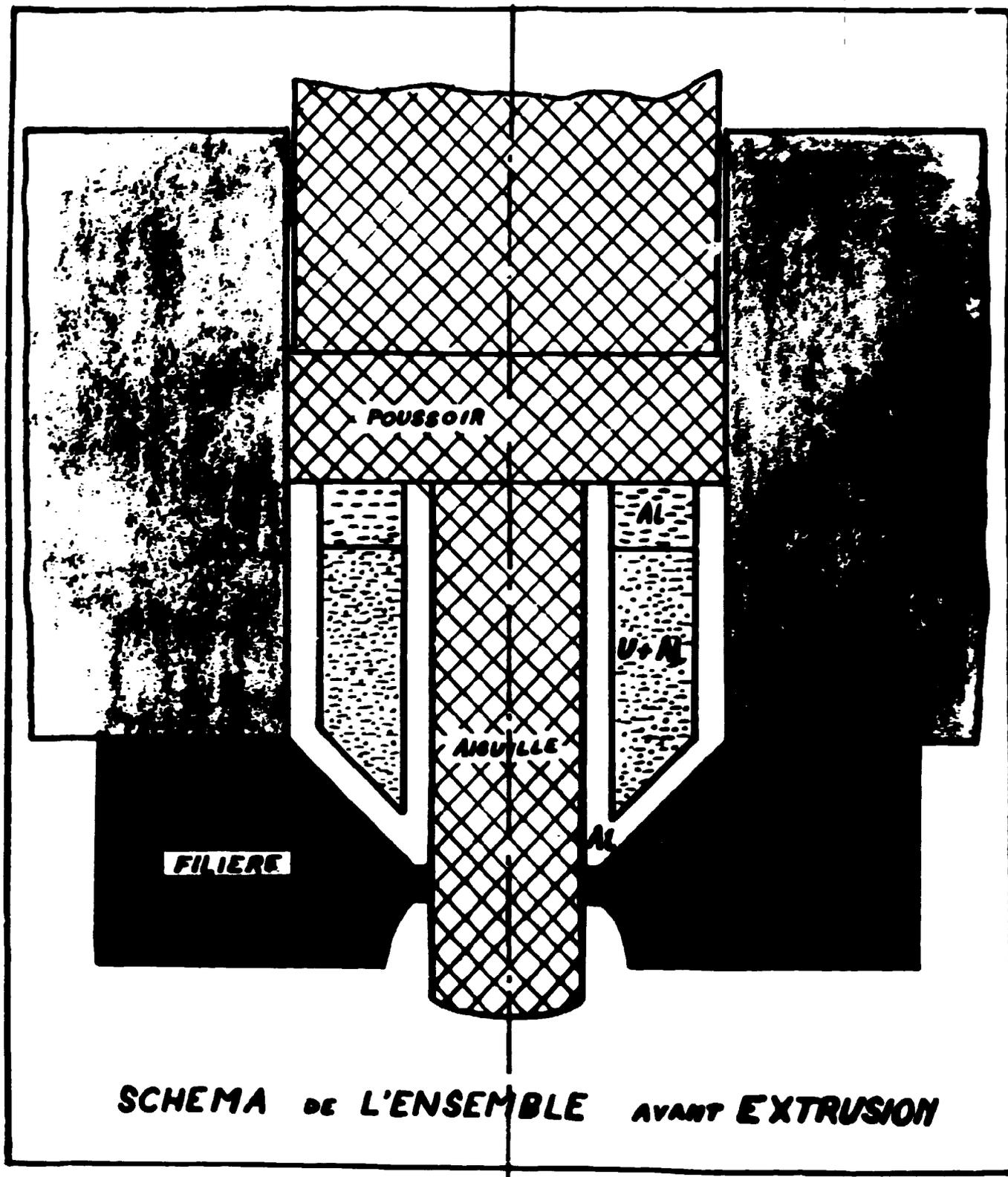


FIG. 12

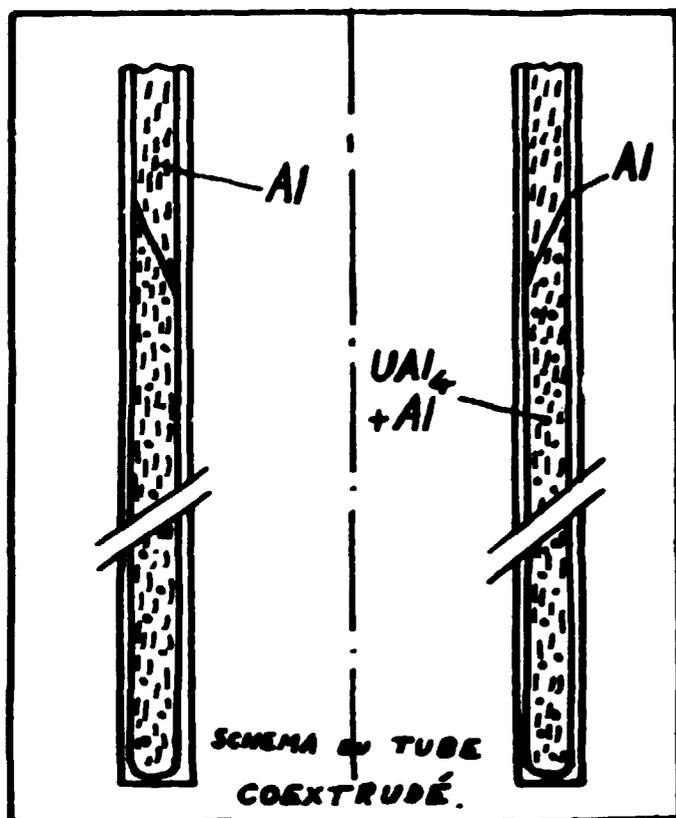


FIG. 13

Schéma du tube coextrudé



FIG. 14

Radio de contrôle du
début de filage et de
l'épaisseur de la gaine



FIG. 15

macro - x 2,5. Coupe
transversale et coupe
longitudinale mise en
évidence de la forme
du noyau en début de
filage.

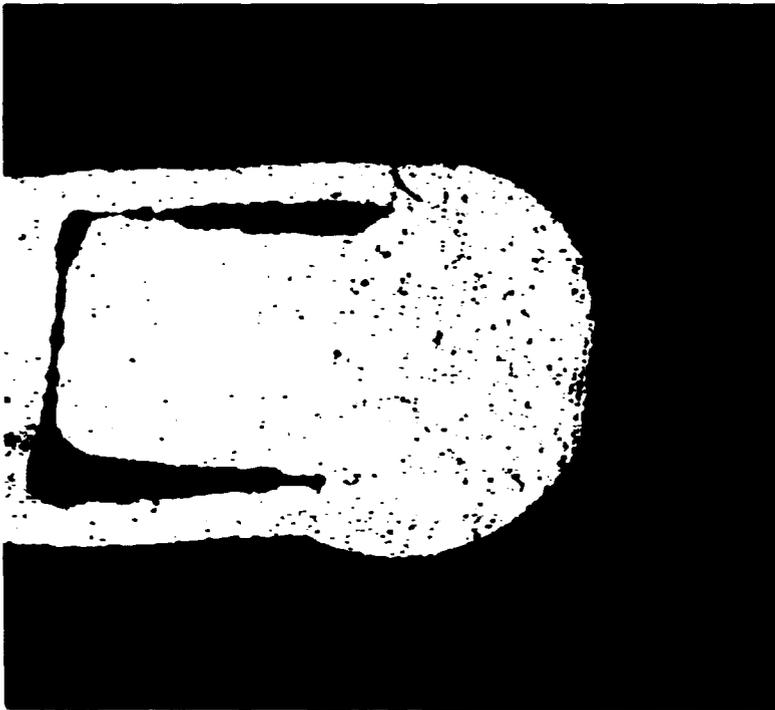


FIG. 16

macro x 1.. Soudure du
bouchon en aluminium.

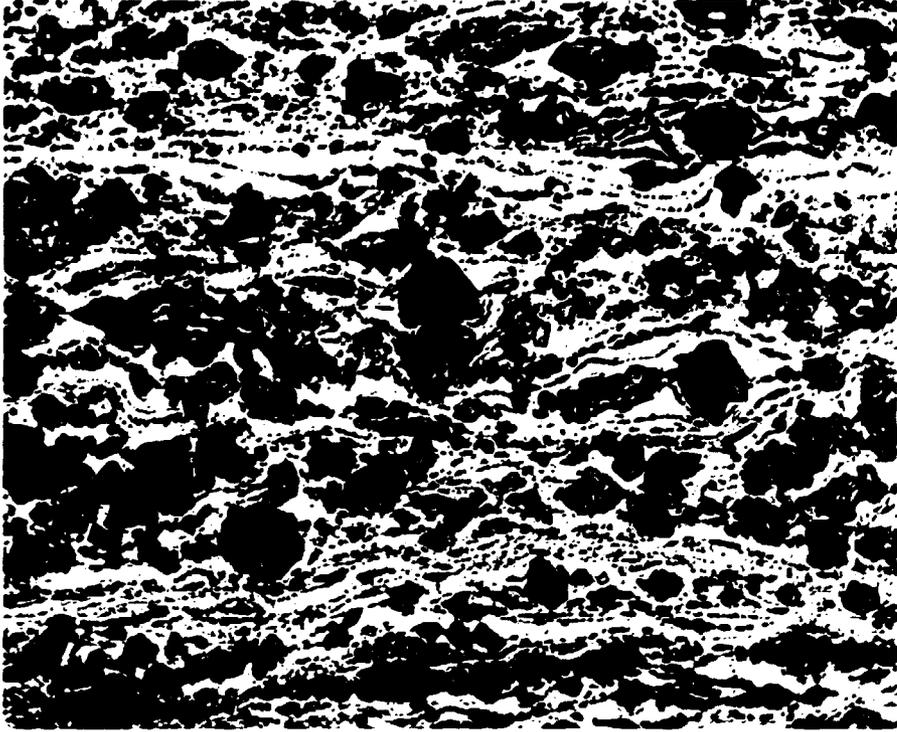


FIG. 17

x 450
Structure du noyau
 $UAl_4 + Al$, à partir de
poudre d' UAl_4 inférieure
à 43μ . (une inclusion
d' UO_2).

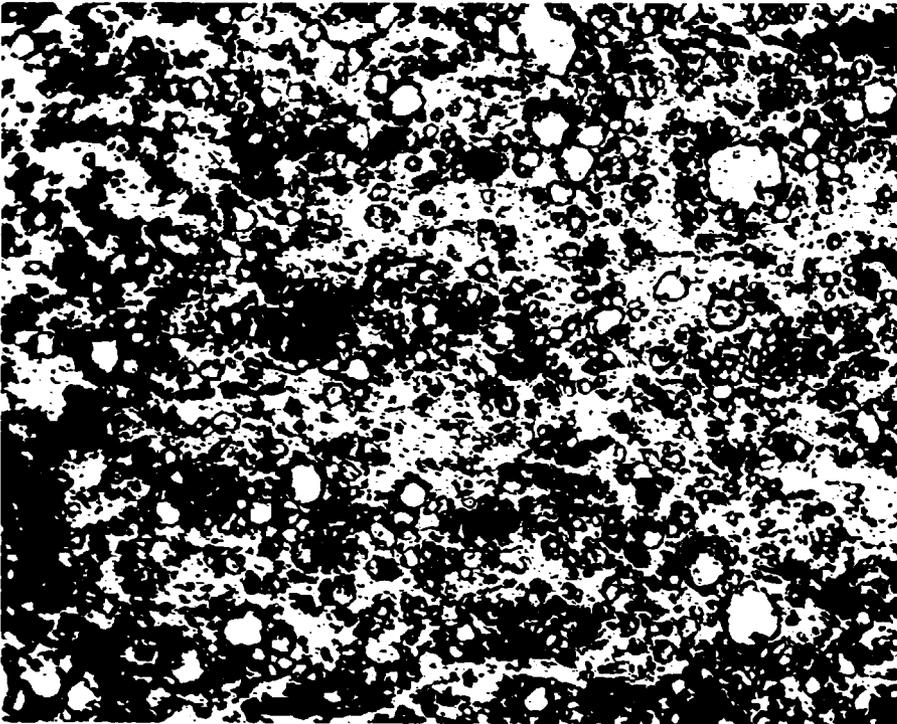


FIG. 18

x 150
Structure du noyau
 $UAl_4 + Al$, à partir de
poudre d'U.

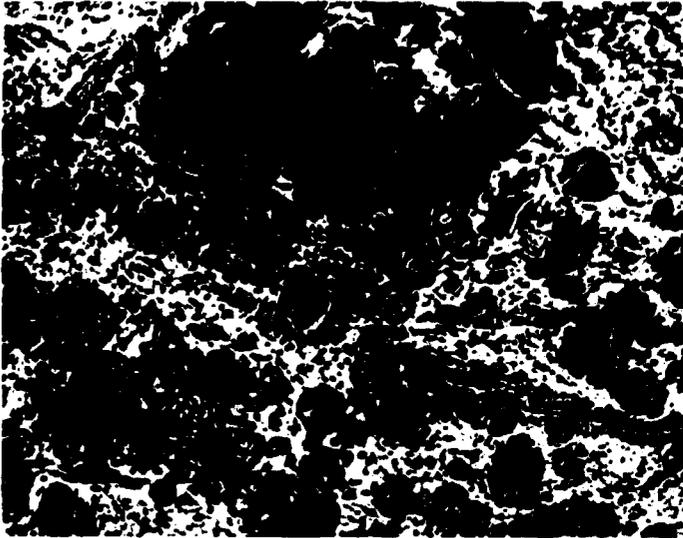


FIG. 19

x 450 - lumière ordinaire. Structure du noyau, $UAl_4 + Al$, à partir de poudre d'U.

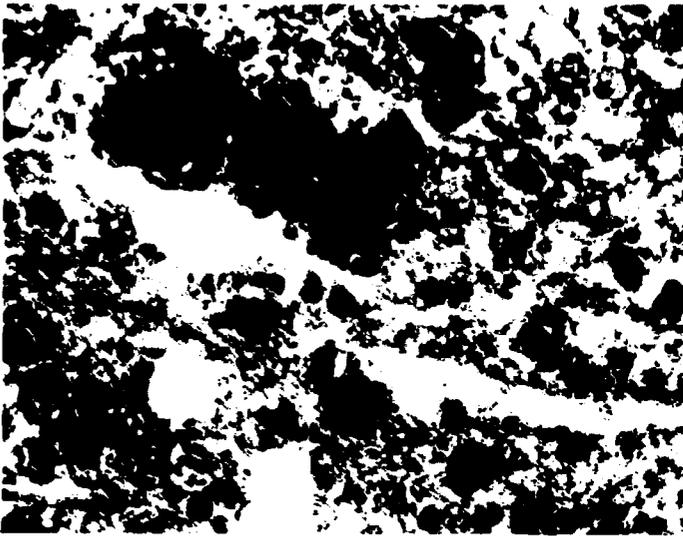


FIG. 19 bis

x 450 - lumière polarisée. Structure du noyau $UAl_4 + Al$ mise en évidence de la recristallisation de l' UAl_4 .



FIG. 20

x 150
Contact noyau-gaine

FIN