

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1980

04.80.18

183

## ANALISIS DEL COMPORTAMIENTO DE DISTINTAS PARTIDAS DE POLVOS DE $UO_2$ DE FABRICACION NACIONAL

J.C. Donaire, J. Malapelle, E. Furman, S. Zalzman, J. Celora, D.Giorsetti, A. Marajofsky.

### COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

En relación con los objetivos de la CNEA de obtener el suministro de elementos combustibles para reactores nucleares con materia prima argentina, la Gerencia de Materias Primas ha encarado el Proyecto  $UO_2$  que tiene como finalidad la provisión de polvos de  $UO_2$  a partir de mineral nacional a la Fábrica de Elementos Combustibles.

En este contexto, la Gerencia de Desarrollo colabora con dicho Proyecto en la especificación de los polvos así como en la adaptación de las técnicas de fabricación a las características de los polvos obtenidos.

Para alcanzar dichos objetivos se ha dividido la tarea en cuatro etapas:

- 1) Fijación de modelos de precipitación y condiciones de calcinación reducción.
- 2) Fijación de condiciones de prensado y sinterización, con los modelos elegidos.
- 3) Optimización de variables de fabricación.
- 4) Optimización en relación al comportamiento bajo irradiación.

Esta división es útil a los fines de priorización pero debe entenderse que cada etapa a su vez modifica las anteriores.

Este trabajo está relacionado con las etapas 1) y 2).

En el Complejo Fabril Córdoba fueron producidas distintas partidas de AUTC variando los modelos de precipitación; cada una de ellas a su vez fue sometida a diferentes condiciones de calcinación y reducción.

Si bien en la línea de producción definitiva se utilizarán para estas últimas etapas hornos rotatorios y posiblemente de lecho fluido, en la preparación de los polvos del presente trabajo se utilizó un horno de lecho fijo que no presenta condiciones de homogeneidad adecuadas en relación a los otros hornos. Aún así, la experiencia resulta válida pues da información sobre los modelos de precipitación y sobre las etapas de calcinación reducción en forma separada, estableciendo una cota mínima de la performance de los polvos.

#### Condiciones de Fabricación:

Consiste en la obtención de curvas de densidad verde versus presión en el prensado y densidad después del sinterizado versus densidad en

verde; las primeras nos dan la máxima densidad en verde obtenible para un polvo dado; por otra parte, cuanto menor sea la derivada en el punto de trabajo, obtendremos más reproducibilidad en la densidad en verde, y por lo tanto, en la densidad final, para prensas que trabajan a volumen constante.

Las curvas de densidad de sinterizado versus densidad en verde nos dan dentro de qué valores de esta última un polvo entra en especificaciones para un tratamiento de sinterización dado.

Las pastillas realizadas con los distintos polvos fueron sinterizadas en un horno continuo de la Planta de Núcleos Cerámicos bajo atmósfera de  $H_2$  a  $1700^\circ C$ . La estancia total de las pastillas fue de 10 horas, encontrándose las mismas 2 horas a la máxima temperatura.

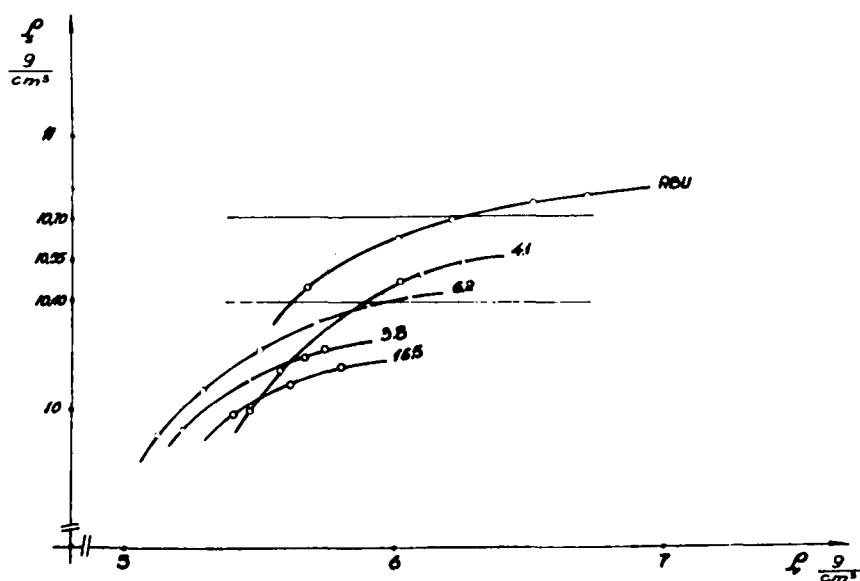


Fig. 1

En la Fig. 1 se observan las curvas de densidad sinterizada versus densidad verde de algunos polvos representativos, comparadas con un polvo de origen RBU. En la Fig. 2 se representaron las curvas de densidad verde versus presión, de donde se pueden extraer las presiones de trabajo, o sea aquellas que corresponden a densidades sinterizadas dentro de especificaciones.

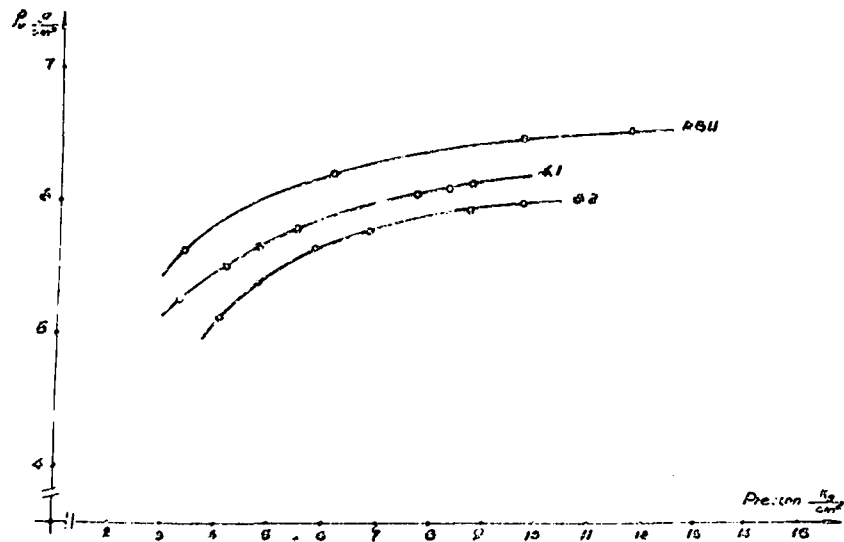


Fig. 2

#### Observaciones morfológicas:

En cuanto a la morfología de un polvo debemos distinguir:

- La estructura de los granos
- La forma de los mismos
- La distribución de tamaños

Si bien estas propiedades morfológicas inciden en forma conjunta sobre el comportamiento de un polvo, podemos en una primera aproximación relacionar: la estructura de los granos con la aptitud para sinterizar, la forma y la distribución con la aptitud para obtener buena compactación y estas mismas características con la aptitud para fluir, propiedad importante en la compactación con prensa automática.

Se puede observar (Fig. 3) que algunos polvos de  $UO_2$  conservan la estructura fina de los AUTC madres (Fig. 4). En cambio, en otros polvos su estructura aparece más gruesa, consecuencia del crecimiento del micrograno (Fig. 5).

En aquellos polvos en que la temperatura de reducción ha sido muy elevada (mayor de  $800^\circ C$ ) (Ref. 1), o que ha habido un aumento local de temperatura (que se observa especialmente en el horno de lecho fijo debido a la exotermicidad de la reacción), se llega a obtener pre-sinterización del polvo (Fig. 6).



Fig. 3 (x 7000)



Fig. 4 (x 6600)

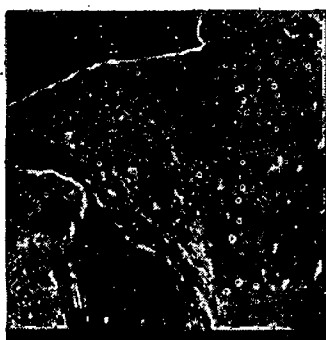
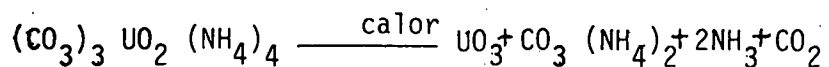


Fig. 5 (x 7000)



Fig. 6 (x 7000)

En algunas partidas de  $UO_2$  se observa en los granos fisuras que pueden ser luego fuentes de microporosidad en las pastillas (Fig. 7). En otras aparecen aristas pronunciadas (Fig. 8). Estas dos últimas modificaciones estructurales son consecuencia de la evolución abrupta de gases en la reacción (Ref. 2):



que se produce durante la etapa de calcinación.

Este fenómeno va a ser más marcado cuanto mayor sea el grano.

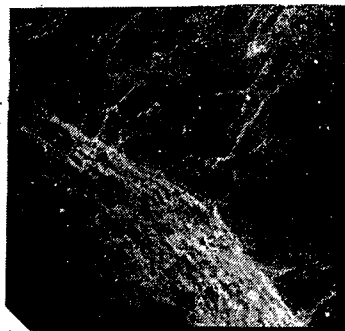


Fig. 7(x. 4400)



Fig. 8 (x 4000)

Conclusiones: Fueron analizadas 8 partidas de AUTC y 37 de UO<sub>2</sub>.

Las partidas de AUTC 3, 4, 5 y 6 presentan estructura fina, poseyendo las partidas 4 y 5 formas más redondeadas, y las 3 y 6 granos con aristas más definidas. Sus tamaños medios oscilan entre 3 y 6 micrones. Las partidas 15, 16 y 17, si bien con estructura fina, presentan formas irregulares, la superficie de los granos poseen orificios y grietas, y abundan los granos con más de 10 micrones.

Los polvos de UO<sub>2</sub> con mejor performance 41, 43, 51, 62, 64, poseen estructura fina, y han sido calcinados pasando por la vía UO<sub>3</sub>.

En algunos polvos de UO<sub>2</sub> se observa el fenómeno de presinterización 39, 52 con el consiguiente decrecimiento de área específica. Las demás partidas presentan estados intermedios. Las pruebas de prensado y sinterizado muestran que:

Los modelos 3, 4, 5 y 6 de AUTC calcinados por la vía UO<sub>3</sub> y reducidos a temperaturas menores de 700°C resultan en polvos de UO<sub>2</sub> que sometidos a un proceso de sinterización con modificaciones del utilizado podrían dar pastillas con densidades dentro de especificaciones.

#### REFERENCIAS:

- 1) J. Celora, A. Marajofsky: INFLUENCIA DE LA TEMPERATURA DE REDUCCION SOBRE LA SINTERABILIDAD DE POLVOS EX AUTC. VI Reunión de la Asoc. Arg. de Tecnología Nuclear - Córdoba, 1977.
- 2) V. Mathieu: UO<sub>2</sub> FUEL FABRICATION BY MEANS OF THE AUC POWDER PROCESS (RBU- Rep. Fed. de Alemania). Transactions ANS 1978.