

ESTABILIDAD TERMICA DE PASTILLAS DE UO_2

J. Ausas, S. Muro, J. Celora, A. Marajofsky

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

El fenómeno de la densificación en pastillas de UO_2 de elementos combustibles fue reconocido en el año 1972 en EE.UU. cuando aparecieron fallas en elementos combustibles atribuidas al mismo.

La densificación de las pastillas de UO_2 en el elemento combustible causa la disminución del diámetro de las mismas, la cual puede provocar un aumento del gap pastilla-vaina y consecuentemente mayores temperaturas de la pastilla debido a la pobre conductancia del gap, no de seables desde el punto de vista de diseño.

Los mayores perfiles de temperatura conducen a un aumento de la energía almacenada en la pastilla y por lo tanto a disminuir la resistencia de la vaina en un hipotético caso de pérdida de refrigerante (LOCA).

En los diseños con vaina colapsable (CANDU), la densificación de la pastilla puede ser acompañada por la disminución del diámetro de la vaina, la cual puede inducir aumento de los juegos en el sistema de soporte del elemento combustible introduciendo la posibilidad de nuevas vibraciones y "freeting".

La densificación es producida fundamentalmente por una disminución del radio de los poros que quedan en la pastilla de UO_2 después de sinterizada; la misma puede producirse por:

- a) Anulación o disminución térmica de los poros; la concentración de vacancias cerca de una superficie depende de la curvatura de la misma (Ref. 1); en particular, es mayor en un poro que en un borde de grano, este gradiente de concentración entre ambos genera un flujo de defectos del poro al borde de grano, y por lo tanto de átomos en sentido inverso que tiende a disminuir el poro.
- b) Efecto neutrónico. La anulación del radio puede ser acelerada por
 - i) un incremento del coeficiente de difusión de vacancias (Ref. 2),
 - ii) anulación por migración de intersticiales creados por irradiación (Ref. 3),
 - iii) aumento de la concentración de vacancias por efecto de "spikes" cerca del poro (Ref. 4).

Independiente de la importancia que dan los autores a cada uno de estos mecanismos, todos coinciden, y experiencias de irradiación lo confirman, que los poros pequeños (menores de 2 micrones) son anulados en bajos quemados (2000 MWd/Tn).

Por esta razón resulta un objetivo fundamental de toda línea de desarrollo de pastillas de UO_2 , la producción de las mismas con la densidad

especificada, pero además con poca porosidad pequeña ($\sim 2 \mu$).

Del mismo modo, todo programa de aseguramiento de calidad requiere la implementación de algún test, que sin necesidad de irradiación provea una forma expeditiva de control, aparte del análisis microestructural.

Consideremos que la porosidad total está constituida por:

$$P_T = P_G + P_p$$

la suma de la porosidad mayor y menor de 2μ , esta última extingible bajo irradiación. El test de resinterabilidad consiste en simular térmicamente la extinción de P_p .

La misma debe hacerse sobre la base de alguna experiencia de irradiación que testifique el porcentaje anulado (Ref. 5).

Independientemente de esta circunstancia, el test de resintering térmico resulta útil desde el punto de vista comparativo, para pastillas fabricadas con distintos polvos.

El test consiste en recocer durante 24 horas a 1700°C pastillas ya sinterizadas, y bajo especificación (Ref. 6). Usualmente se considera las pastillas que no incrementan su densidad en más del 1% como satisfactorias; este valor está sujeto a las especificaciones de cada diseño.

Las densidades fueron medidas por inmersión en xileno, debiéndose termostatar el líquido en $0,1^\circ\text{C}$ para poder asegurar $0,01 \text{ g/cm}^3$ en la medida de la densidad.

El recocido fue realizado en un horno de molibdeno del Laboratorio del Grupo de Materiales Combustibles bajo atmósfera de H_2 .

Fueron sometidas al test pastillas realizadas con polvo RBU en dos procesos distintos, y pastillas con polvo de procedencia Planta Fabril Córdoba (Tabla 1).

TABLA 1

PARTIDA	d_{SI}	d_{SF}	d%
4.1 PFC	10.48	10.64	1.5
6.2 PFC	10.43	10.62	1.7
5.1 PFC	10.48	10.64	1.5
4.5 PFC	10.51	10.64	1.2
6.4 PFC	10.47	10.62	1.4
5.3 PFC	10.06	10.45	3.7
5.10 PFC	10.01	10.44	4.1
A 0 RBU Proceso 1	10.55	10.60	0.47
A 1 RBU Proceso 1	10.57	10.62	0.47
A 2 RBU Proceso 1	10.56	10.61	0.47
D 1 RBU Proceso 2	10.57	10.67	0.94
D 2 RBU Proceso 2	10.56	10.66	0.94
D 3 RBU Proceso 2	10.55	10.66	1.03
D 4 RBU Proceso 2	10.54	10.65	1.03
D 5 RBU Proceso 2	10.54	10.65	1.03

Si bien la cantidad de pastillas utilizadas no es suficiente para obtener una buena estadística, se pueden observar tendencias, ellas nos indican:

- a) Cada polvo de UO_2 llega a un valor límite característico de la densidad (Ref. 6). Ello se explica por ser la morfología del polvo determinante en la formación del tipo y clase de poros de la pastilla.
- b) Ese valor límite puede ser influido por el proceso de fabricación (polvos A y D).
- c) Los polvos de Planta Fabril Córdoba en los casos considerados llegan a un valor límite de 10.64, una pastilla de densidad 10.55 obtendría un porcentaje de post-resintering de 0.84 lo que resulta satisfactorio para un nivel de aceptación del 1% en la variación de densidad.

Se realizaron además, antes y después del resintering metalografías de cada pastilla en un corte transversal, y sobre ellas un estudio cuantitativo de la distribución de porosidad mediante un analizador semiautomático Kontron M03.

En las Fig. 1 a 6 se observan micrografías típicas de las pastillas antes y después del resintering, notándose diferencias cualitativas entre ellas.

Para el análisis de la distribución se utilizó la clasificación en área, dividiendo la muestra en 20 clases. Esta distribución no es la real de diámetros en el volumen, pero resulta útil a los fines comparativos.

De las curvas de distribución (Fig. 7) se puede observar que en todas las pastillas el porcentual de porosidad fina disminuye (las primeras clases); que el porcentaje de porosidad fina en todas las pastillas es semejante; que la disminución en los polvos A y D es muy parecida consistiendo la diferencia en la cantidad de porosidad gruesa. Se observa que la disminución de porosidad fina en el polvo de PFC es menor.

En los tipos de polvos utilizados resta un porcentaje importante de porosidad fina residual después del test de resintering; para que los valores obtenidos del mismo posean validez no sólo en términos relativos, resulta necesario realizar experiencias de irradiación para poder apreciar la porosidad residual post-irradiación y de este modo comparar con la porosidad residual térmica, definiendo un coeficiente que las relacione, siempre con referencia a un tipo de polvo de partida y un proceso dado.

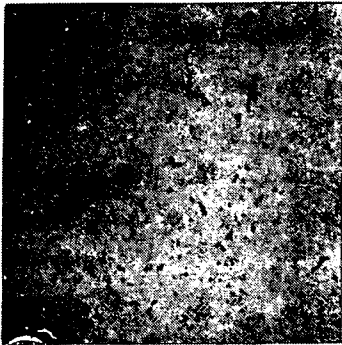


Fig. 1 (x 400)
A 0 antes

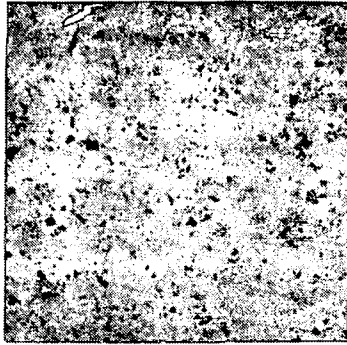


Fig. 2 (x 400)
D antes

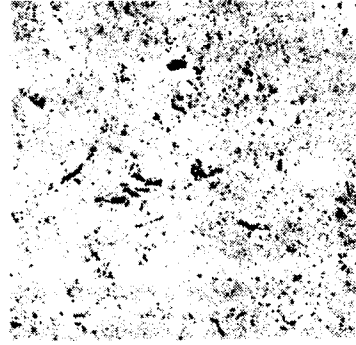


Fig. 3 (x 400)
PFC antes

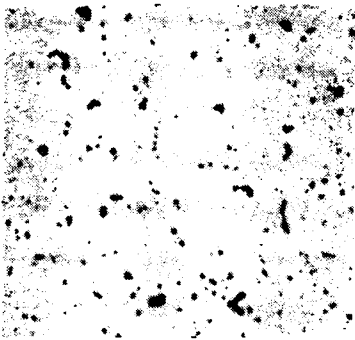


Fig. 4 (x 400)
A 0 después

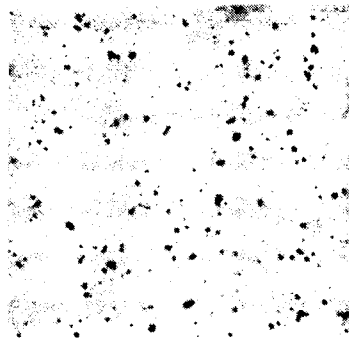


Fig. 5 (x 400)
D después

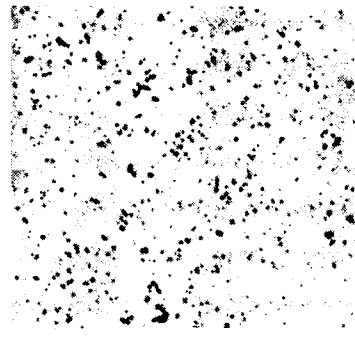


Fig. 6 (x 400)
PFC después

REFERENCIAS:

- 1) LA THEORIE DU FRITTAGE. C. Kuczynski, CEA, 1960.
- 2) M.O. Marlowe. Trans. Am. Nuc. Soc., 17, 166 (1973).
- 3) S.R. Mac Ewen and I.S. Hastings, Phil. Mag. 31, 135 (1975).
- 4) H. Stehle and H. Assman. J.N.M., 52, 303 (1974).
- 5) J. E. Littlechild, G.G. Butler. Nuclear Fuel Quality Assurance. I.A.E.A. 1976.
- 6) Panel on Quality Assurance and Control in Nuclear Fuel Manufacture. Appendix D. Vienna, 1974.
- 7) E.E. Underwood. Chap. 6. Quantitative Microscopy. Ed. De Hoff and Rhines.

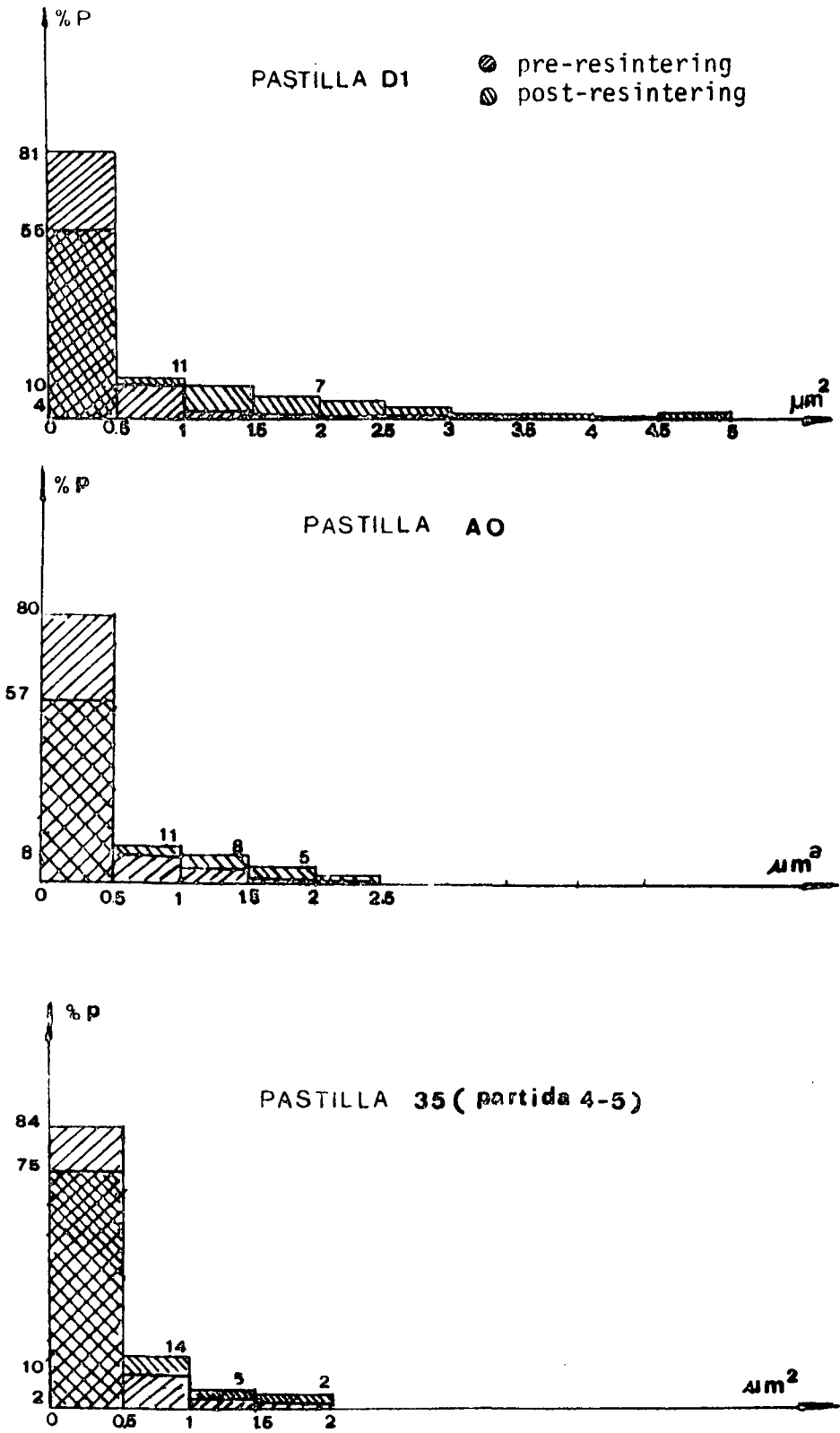


Figura 7