

04.84.10.

FABRICACION A NIVEL INDUSTRIAL DE PASTILLAS DE UO2 PARA LOS  
ELEMENTOS COMBUSTIBLES DE LA CENTRAL NUCLEAR ATUCHA I.

DYMENT, Isaac G.

NOGUERA ROJAS, Francisco

PRÓYECTO PLANTA PILOTO F.E.C.N. A - GERENCIA DE DESARROLLO

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

RESUMEN

Con la construcción de la primera Central Nuclear argentina, ATUCHA I (CNA), surge la inquietud de fabricar, en el país los elementos combustibles nucleares para abastecerla en el futuro y en el marco de una política de autoabastecimiento en el suministro de los mismos.

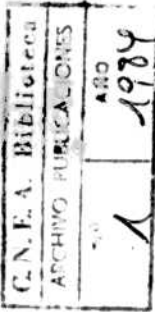
Los primeros pasos hacia esa meta, se realizaron en el procesamiento del óxido de uranio para transformarlo en pastillas o núcleos combustibles de alta densidad.

Los desarrollos de fabricación de pastillas combustibles realizados en la CNEA desde 1968, primero a escala de laboratorio y posteriormente a escala industrial, han permitido poseer una línea con capacidad tecnológica propia y producción de 400 kg. de UO2/día. (Consumo de la CNA 240 kg.UO2).

El método de fabricación de pastillas combustibles es básicamente un proceso pulvimetalúrgico donde, además de un equipamiento convencional, se encuentra otro que por sus características especiales y específicas ha merecido la implementación de programas de ensayos sistemáticos para su desarrollo y/o puesta a punto, como así también un entrenamiento particular a nivel operacional.

Los procesos desarrollados corresponden a una tecnología moderna y de avanzada en cuanto se eliminan métodos clásicos, - utilizados aún hoy en la mayoría de las fábricas de elementos combustibles, tales como el precompactado de Polvo UO2, la molienda del precompactado, agregado de ligantes y lubricantes al óxido de uranio y presinterizado para eliminar estos últimos, con la consiguiente economía que ello significa en los correspondientes programas de fabricación, toda vez que se disponga del polvo de UO2 de características apropiadas.

Dado las altas exigencias a que es sometido el elemento combustible en servicio nuclear, ocupan un lugar de relevancia los programas de control y aseguramiento de la calidad aplicados durante los procesos de fabricación, como así también aquellos previos a su suministro.



ANTECEDENTES

- .En 1968 comienzan los trabajos de investigación y desarrollo en la línea de combustibles UO<sub>2</sub>-Zircaloy (1.2.3.4.5.6.).
- .En 1969 se realizan las primeras experiencias en caracterización y compactado de óxido de uranio para la obtención del pellet de UO<sub>2</sub>. Desde entonces al presente y sin solución de continuidad, se trabaja sobre el tema habiéndose desarrollado todas las técnicas necesarias hasta obtener una línea de fabricación capaz de procesar 400 kg.de UO<sub>2</sub>/día. (Fig.1).

DESARROLLOS DE LA TECNOLOGIA DE FABRICACION DE PASTILLAS

Año	Tipo de elemento combustible	Reactor	Desarrollo de las técnicas de fabricación	Material combustible de partida	Enriquecimiento U 235 %
1969			Caracterización de polvo UO <sub>2</sub> . Compactado de Pellets UO <sub>2</sub> .	UO <sub>2</sub> grado cerámico	Natural 0,7 %
1970		MZFR (Alemania) SILOE (Francia)	Sinterización continua Conversión de F <sub>6</sub> U a UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub> grado cerámico F <sub>6</sub> U	Natural 4 %
1971	Barras Al.UO <sub>2</sub>	RA-3 (Blanket)	Pellets UO <sub>2</sub> Vainas Al. Tapones sold. TIG.	UO <sub>2</sub> grado cerámico	Natural
1972	Barras Zry-UO <sub>2</sub>	MZFR (Alemania) (1b)	Dosificación UO <sub>2</sub> a zapata de carga de matriz	UO <sub>2</sub> grado cerámico distintas proced. y calidades	Natural
1973			Compactado múltiple Rectificado continuo	UO <sub>2</sub> Polvo UO <sub>2</sub> Pellets	Natural
1974	Barras Zry-UO <sub>2</sub>	MZFR (Alemania) (II)	Lubricación automática de matrices para compactado	UO <sub>2</sub> grado cerámico	1,1 %
1976	Barras Zry-UO <sub>2</sub>	Atucha (Argentina) (2 EC) Lote (XA)	Compactado múltiple con equilibrador de presiones	UO <sub>2</sub> grado cerámico	Natural
1977	Barras Zry-UO <sub>2</sub>	Atucha (11 EC) Lote (XB)	Rectificado con muela diamantada	UO <sub>2</sub> grado cerámico	Natural
1979	Barras Zry-UO <sub>2</sub>	Atucha (12 EC) Lote (XC)	Puesta a punto. Línea industrial de FEON.	UO <sub>2</sub> grado cerámico	Natural
1980	Barras Zry-UO <sub>2</sub>	Atucha (100 EC) Lote (XD)		UO <sub>2</sub> grado cerámico	Natural
1981	Barras Zry-UO <sub>2</sub>	Atucha (117 EC) Lote (XD)		UO <sub>2</sub> grado cerámico	Natural

Fig. 1

Los trabajos que más experiencia y conocimiento han aportado, fueron los relativos a la construcción de núcleos para prototipos CNEA-MZFR 1; 1b) y II (7.8.). Particularmente el 1b) se elaboró con 5 tipos diferentes de polvo de UO<sub>2</sub> de distintas calidades y procedencias. Esto permitió desarrollar diversas técnicas para su caracterización y acondicionamiento de aquéllos que por sus características físicas no podían ser utilizados en forma directa. Se evaluaron parámetros de prensado, sinterizado y rectificado, adquiriéndose amplia experiencia en diseño de matrices.

## ESQUEMA GENERAL DEL PROCESO

En la fabricación actual de pastillas combustibles se emplea un método considerado moderno y económico que reduce el número de pasos de fabricación y, en consecuencia, su costo de producción es menor. (Proceso "A", Fig.2).

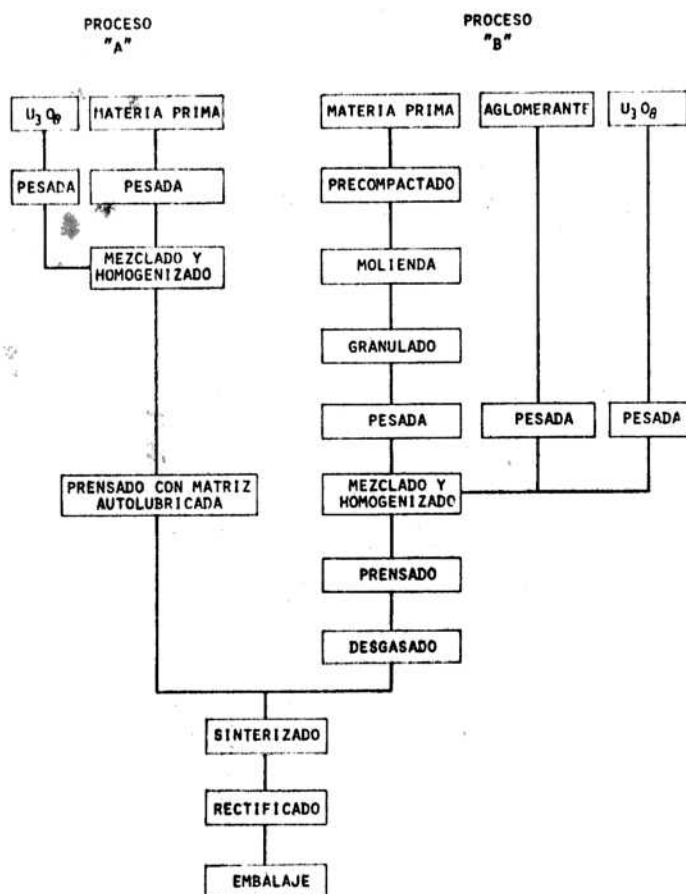


Fig. 2

### MEZCLADO Y HOMOGENEIZADO

Primer paso éste en la línea de fabricación de pastillas. En cada lote de polvo UO<sub>2</sub> es necesario y conveniente agregar un porcentaje de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> el cual oscila entre el 3 y 7%. Dicho porcentaje se determina mediante un ensayo previo de densificación en pastillas sinterizadas. El U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> es producto de la oxidación de pastillas de UO<sub>2</sub> sinterizadas y/o rectificadas, apartadas por defectuosas en su inspección final.

En consecuencia, con este procedimiento se aprovecha gran parte del descarte de fabricación disminuyendo el mismo considerablemente. Pero el motivo fundamental de su agregado es que el U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> actúa como pasivador en la sinterización, favoreciendo la estabilización de la densidad en servicio nuclear.

### COMPACTADO - Generalidades

Mediante una prensa de compactado con un herramental consistente de dos punzones y una matriz de diseño especial, se lleva a cabo la transformación del polvo a pastillas de UO<sub>2</sub>. Los compactos adquieren aprox. el 50% de densidad de la densidad teórica del UO<sub>2</sub>.

Las condiciones básicas de este proceso son contar con: materia (polvo UO<sub>2</sub>) con buenas características de fluidez, densidad aparente y área específica entre otras y un herramental de prensado que permita la lubricación automática de las matrices.

La línea completa de fabricación consta de:

- .mezclador homogenizador de polvo (donde se prepara la materia prima);
- .prensa peletizadora;
- .horno de sinterización;
- .rectificadora sin centros;
- .horno de oxidación;
- .estufa de secado y

otro equipamiento accesorio menor como:

- .aspiradoras de limpieza y trasvase,
- .carros de transporte, e
- .instrumental de medición para control de producción.

Como se observa en la Fig.3, no es posible obtener pastillas con la densidad requerida (Atucha  $10,55 \pm 0,15$  gr/cm<sup>3</sup>) sólo a través del prensado ya que la función densidad en crudo vs. presión, a valores menores que los requeridos, supera las posibilidades técnicas.

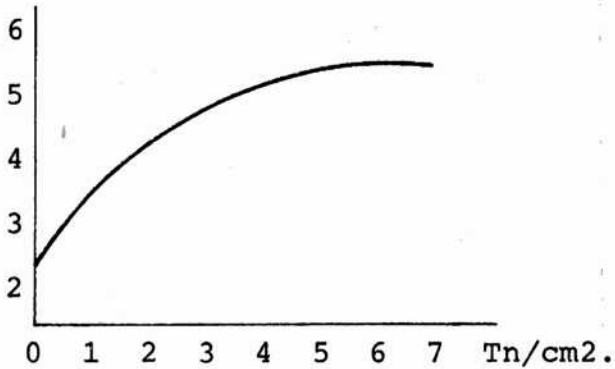


Fig. 3

En presiones muy altas aumenta la posibilidad de fallas en las pastillas. Por esta razón normalmente se fija la presión durante la producción en no más allá de las 5 Tn/cm<sup>2</sup>.

Se trabaja con densidades en crudo de 5,5 a 6,2 gr/cm<sup>3</sup>. El límite inferior está fijado por la mínima firmeza necesaria para el manipuleo de los compactos y la densidad de sinterizado requeridos.

La tecnología de compactado empleada para pastillas Atucha es de doble efecto, es decir, prensado simultáneo de ambos lados con dos punzones.

Las fuerzas de rozamiento internas y las que aparecen entre el compacto y la pared de la matriz, dan como resultado una pastilla que tendrá distintas densidades en su longitud.

Debido a esta característica y a la propiedad del sinterizado de equilibrar las densidades, se obtendrá un cuerpo sinterizado de igual densidad pero con mayor contracción en la zona menos densa de la pastilla cruda. De esto se obtiene, luego del sinterizado, un cuerpo en forma de reloj de arena. (Fig.4).

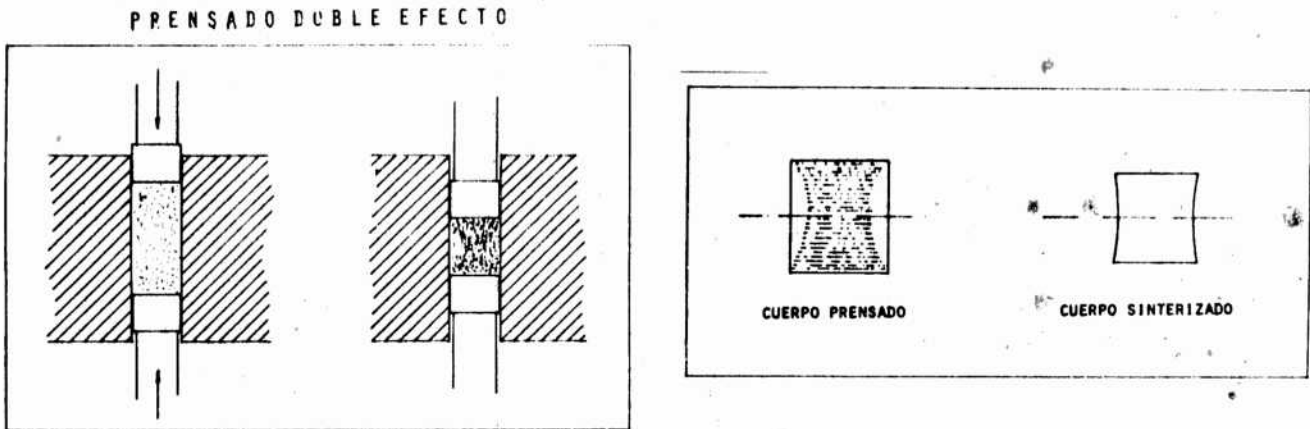


Fig. 4

En la fabricación de pastillas Atucha, es posible utilizar hasta siete matrices simultáneamente en una prensa de 50 toneladas.

El ciclo utilizado en la fabricación de pastillas Atucha es el indicado en el diagrama de la Fig.5.

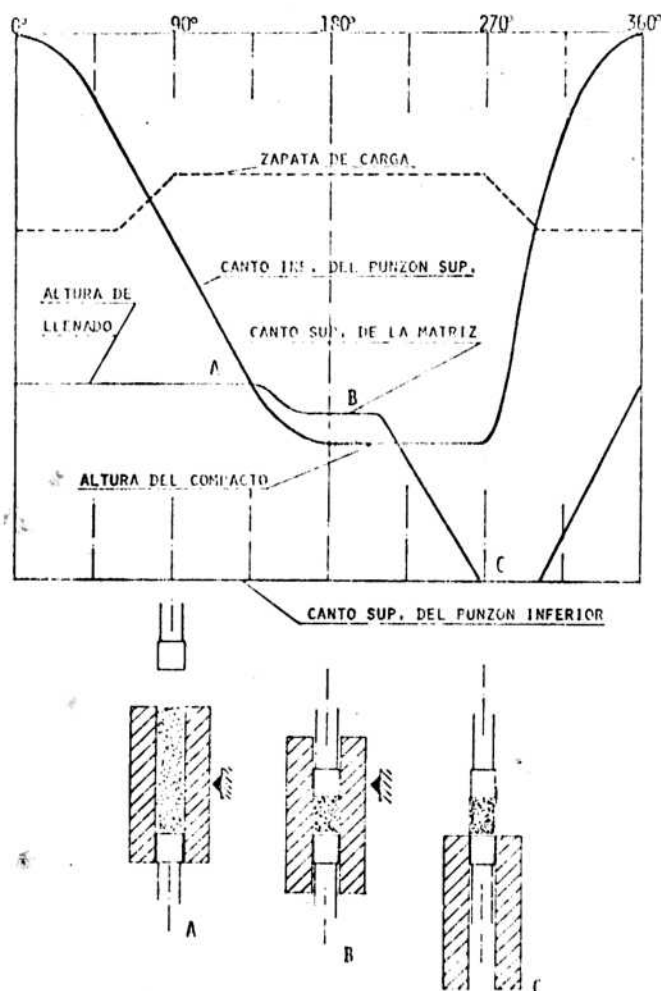


Fig. 5

La densidad de las pastillas de UO<sub>2</sub> sinterizadas depende de los siguientes parámetros: Densidad en verde de los compactos, temperatura y tiempo de sinterizado.

### Sinterabilidad del polvo

No todos los polvos de UO<sub>2</sub> son aptos para sinterizar. Si bien la sinterabilidad depende fundamentalmente de una serie de propiedades físicas tales como superficie específica, estructura de la red cristalina, tamaño de los cristales, forma de los mismos, etc., podemos considerar la sinterabilidad como una propiedad más.

Cuando el UO<sub>2</sub> es fabricado por un determinado proceso y se obtienen polvos semejantes, es posible deducir la sinterabilidad del mismo, controlando la superficie específica según el método BET.

Para posibilitar la fabricación de pastillas es necesario partir de un polvo "estabilizado" lo cual se hace en el proceso de fabricación del UO<sub>2</sub> con una oxidación controlada para llevar la relación O/U a valores de 2,07 a 2,17. La propiedad de sinterabilidad de un polvo depende fuertemente de la estequiometría.

A fin de fabricar pastillas de UO<sub>2</sub> estequiométricas que cumplan con las especificaciones, es indispensable realizar el sinterizado en atmósfera de H<sub>2</sub>. La reducción de los compactos debe producirse en forma lenta y completarse antes de comenzar el sinterizado.

### SINTERIZADO - Generalidades

La palabra "sinterización", derivación castellana de "sintering" o "sinterhung", se utiliza para identificar un tratamiento térmico que, realizado bajo determinadas condiciones, actúa sobre partículas de polvo comprimidas. En este proceso, la afinidad mecánica entre partículas lograda por la presión de compactado, se transforma en verdadera soldadura como consecuencia de un mecanismo de difusión.

Lo original es que a través de este mecanismo un cuerpo de polvo compactado de reducida densidad, es transformado en uno de alta densidad por contracción volumétrica, pero conservando la forma inicial. Esto ocurre a temperatura bastante inferior al punto de fusión del material en cuestión.

En el caso del UO<sub>2</sub> cuyo punto de fusión es de aprox. 2800°C, se pueden lograr densidades del 95% de la densidad teórica, a temperaturas de sólo 1600°C partiendo de compactos con una densidad aprox. 50% de la teórica

### Temperatura de la zona de reducción

La temperatura de la zona de reducción se determina en función de otros parámetros de producción, p.ej. influyen en la elección de esta temperatura características físicas del polvo de  $UO_2$ , fundamentalmente la relación O/U, como así también la densidad de prensado de la que partimos y la densidad de sinterizado a la que debemos llegar. En base a estas consideraciones y al horno utilizado, se determinó que la temperatura de reducción más apropiada estaba entre los  $600^{\circ}C$  y  $800^{\circ}C$ .

### Temperatura de Sinterizado

Los hornos de sinterizado que se utilizan están diseñados para trabajar en esta zona hasta temperaturas de  $1800^{\circ}C$ . La temperatura de sinterizado como así también el tiempo de sinterizado y la densidad de prensado influyen en la densidad final especificada del compacto. En razón de las exigencias de las especificaciones en cuanto a densidad y tamaño medio de grano, y a fin de evitar el "resintering" en servicio nuclear, se trabajó a temperaturas de  $1700-1750^{\circ}C$ .

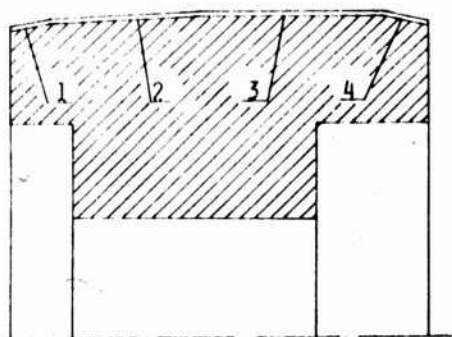
### Tiempo de sinterizado

El tiempo de sinterizado, es decir, el tiempo en que las pastillas permanecen a la máxima temperatura, varía en nuestro proceso entre 2 y 4 horas. Sin embargo, a menudo el tiempo total de pasaje a través del horno no está determinado precisamente por el tiempo de sinterizado sino por el de reducción.

### RECTIFICADO

Las pastillas de  $UO_2$  salen del proceso de sinterizado con una sobremedida que oscila entre 0,10 y 0,20 mm en el diámetro. A fin de mantener los límites de tolerancia especificados (+0,01 mm), es necesario realizar un rectificado cilíndrico. Esta operación se llevaba a cabo en una rectificadora sin centros convencional.

Las primeras experiencias de rectificado se realizaron con muelas de carburo de silicio que tienen la ventaja de impartir a las superficies rectificadas, una rugosidad bajísima pero, como contrapartida, se desgastan rápidamente siendo necesario un ajuste frecuente de la máquina. Por esta razón, cuando hubo necesidad de procesar grandes cantidades de material, se adoptó la muela diamantada. Un perfil de la misma se muestra en la Fig.6 el cual permite realizar la operación en una sola pasada.



1. Zona de desbaste grueso;
2. Zona de desbaste fino;
3. Zona de rectificado;
4. Descarga

Fig. 6

### CALIDAD - Generalidades

La manera de lograr la estricta calidad exigida por las especificaciones y altos rendimientos del producto fabricado, se basa en un seguimiento paso a paso de los procesos y equipamiento, manteniendo los medios de producción dentro de sus ajustados parámetros, dado lo complejo de la materia prima, de características cerámicas.

### Control de producción

Es realizado por el mismo personal afectado a la fabricación. El supervisor de turno controla el producto obtenido en cada etapa y realiza los ajustes necesarios al equipamiento utilizado.

### Control de calidad (9)

Esto es realizado por un Departamento independiente responsable de detectar material fuera de especificación y advertir a Producción sobre si hay tendencia a desviaciones de las especificaciones de algún parámetro, lo cual permite corregir la causa producida ya sea por desgaste de herramental o por fallas de operación.

### CONCLUSIONES

El proceso de fabricación de pastillas combustibles Atucha descripto a grandes rasgos en este trabajo, ha sido desarrollado paso a paso en CNEA pues si bien el mismo es común en industrias similares extranjeras, éstos no fueron comprados sino experimentados lo cual nos permitió fabricar pastillas de UO<sub>2</sub> y poder solucionar con certeza todos los problemas inherentes a tal fabricación. El aporte de la tecnología de fabricación de pastillas para combustibles de potencia a investigación fue del 100% nacional.

Dentro del marco del Proyecto PPFEEN-A se fabricaron núcleos cerámicos para 245 Elementos Combustibles en cuatro etapas: Lotes XA - XB - XC y XD (= 50 Tn UO<sub>2</sub> procesado - = 4.000.000 pastillas liberadas. Las últimas 40 toneladas que conforman el lote XD se comenzaron a procesar en Agosto de 1980 produciendo a un promedio de 300 Kg.de UO<sub>2</sub>/día.

El descarte total de producción en este último lote fue de aprox. 9% compuesto por: 5% en forma de pastillas; 2% en barro de rectificado; 1% polvo contaminado; 1% merma.

### REFERENCIAS

1. BIONDO, C., KOLL, H., Desarrollo de técnicas de fabricación de barras combustibles del tipo UO<sub>2</sub>/Zircaloy. IV Jorn. Metal. Arg., SAM, Córdoba 1970. Convención Unión Panam. de Ing. UPADI, Bs. As. Arg. Set. 1970. Public. Int. CNEA (1970).
2. DYMENT, I., Fabricación de pastillas combustibles cerámicas UO<sub>2</sub>, IV Jorn. Metal. Arg. SAM. Córdoba 1970, public. int. CNEA (1970).
3. MONTENERO, C., MAZER, E., Desarrollo de soldadura por resistencia de extremos de barras combustibles, IV Jorn. Metal. Arg. SAM, Córdoba, 1970, public. int. CNEA (1970).
4. DE GRANDE, A., Ensayos de corrosión de soldadura y componentes de zircaloy-4, IV Jorn. Met. Argent. SAM. Córdoba, 1970, pub. int. CNEA (1970).
5. ABRALES, H., BARMAN, I. L., VENTURINO, C., Ensayos no destructivos de tubos de paredes delgadas, IV Jorn. Metal. Arg. SAM, Córdoba 1970, pub. CNEA (1970).
6. BAEZ, J., ROA, L., Diagramas de exposición y sensibilidad de la radiografía de zircaloy, IV Jorn. Metal. Arg. SAM, Córdoba, 1970, pub. int. CNEA 1970.
7. NOGUERA ROJAS, F. Metodología y resultados obtenidos en la fabricación del núcleo prototipo 1b. Informe int. 8/74. Dpto. Combustibles CNEA.
8. CARLONI, J., NOGUERA ROJAS, F., Informe de fabricación del núcleo del elemento combustible prototipo CNEA-MZFR. II Inf. int. 24/75. Dpto. Combustibles CNEA.
9. CIARROCHI, A., RUGGERI, I., Evaluación de la experiencia obtenida en el control de calidad de Pastillas de UO<sub>2</sub> sobre una producción de 40 Tn. AATN-X Reunión Científica. Bahía Blanca.