

C. S. P. A. S. I. I. O. R.	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
NO 1	ANO 1984

PRODUCCION Y CARACTERIZACION DE PASTILLAS DE UO₂ FABRICADAS CON POLVOS DE DIFERENTES CARACTERISTICAS

D.O. Vidal, R. Cerigioni, L. Recalde, N. Boero, G. Leyva,
V. Goldbeck, A. Boselli, G. Sado, M.A. Alvarez Nicolini,
ingrillo *Julio* Celora, A. *duffy* Marajofsky

Comisión Nacional de Energía Atómica, Gcia. Desarrollo,
Departamento Combustibles Nucleares

de Saraguro

En el desarrollo de elementos combustibles o bien en el de componentes del mismo (p.ej. pastillas combustibles o tubos de Zry) es necesario conocer los cambios en el comportamiento por alteraciones en los parámetros de diseño o fabricación, para verificar las tendencias calculadas o previstas.

Esto se realiza normalmente sometiendo al elemento combustible o parte de él a experiencias en las cuales se valúa el cambio de su comportamiento en conjunto o de la propiedad especialmente alterada por la modificación. Estas experiencias consisten en ensayos de simulación fuera del reactor o bien en reactores experimentales. Si se conoce con cierta certeza la magnitud de la alteración del comportamiento, el cambio puede introducirse directamente en la producción a condición de que a los primeros elementos combustibles producidos de este modo se los somete a un seguimiento estricto dentro y fuera del reactor.

Muchos de los estudios de modificaciones a ser incorporados a la producción son realizados previamente a nivel de laboratorio -o bien los productos son fabricados a ese nivel-. En este caso, algunas de las exigencias que se plantean son:

- a.- Es necesario ejecutar los procesos y fabricar el producto de forma que se asemejen al máximo a los de producción.
- b.- Es necesario realizar una caracterización exhaustiva del producto, así como de cada etapa del proceso, para poder establecer,
 - i) Relaciones entre parámetros del proceso y características del producto.
 - ii) Reproducibilidad del proceso.

Estas exigencias son ampliadas si el material combustible es también objeto de estudio en una irradiación experimental:

- c.- El tipo de polvo a utilizarse debe ser el de producción o muy semejante, puesto que el comportamiento microestructural de la pastilla va a estar determinado por el tipo de porosidad y grano, propiedades estas, dependientes del polvo.

- d.- Si la irradiación se realiza en un reactor de experimentación, razones neutrónicas normalmente imponen que las pastillas deben poseer un cierto grado de enriquecimiento. Si ese enriquecimiento se obtiene por mezcla directa de polvos (a menos que sean del mismo tipo de polvo), se altera la microestructura de la pastilla.

Por lo tanto, si se desea obtener pastillas equivalentes (que observen el mismo comportamiento) a las de producción es necesario partir en la fabricación, de soluciones de uranio enriquecido, las cuales serán precipitadas del modo conveniente para llegar a obtener polvos de UO_2 según se desea (pero enriquecidos homogéneamente).

- e.- Si se desea estudiar el efecto de utilizar otro polvo sobre el comportamiento de la pastilla, es necesario colocar además pastillas de referencia del polvo de producción, para poder realizar un estudio comparativo y asegurar la misma historia de irradiación para ambos tipos de pastillas.

Este trabajo se refiere a la producción de aproximadamente un millar de pastillas a nivel de laboratorio para una irradiación, y la forma en que ella se condujo teniendo en cuenta las exigencias mencionadas.

ORGANIZACION DE LAS ETAPAS DE LA PRODUCCION Y DE LOS CONTROLES

En base a los objetivos parciales de la irradiación en relación con el material combustible (Tabla I'), se organizaron las etapas de la producción (Fig. 1) y los parámetros de trabajo (Fig. 2). Previamente a la fabricación utilizando Uranio enriquecido debió asegurarse la reproducibilidad de los procesos y los controles que los garantizan (Fig. 2). Asimismo fue definida la documentación necesaria de los procesos y de la caracterización de polvos y pastillas en cada etapa, que permitirá la comparación con los resultados de la irradiación.

Se observa en la Fig 1 que la primera etapa consiste en la obtención de polvos de uranio natural sinterizables y reproducibles. Esta etapa consistió en la precipitación de polvos de AUC (Uranil-tricarbonato de amonio) realizada durante 1980 por el Dto. de Desarrollo de Procesos, y la conversión y verificación de la reproducibilidad por el Dto. de Combustibles (AATN 1980).

La segunda etapa comprendió:

- a) Diseño y fabricación de matrices de compactado para los distintos tipo de polvos a utilizar. Este cálculo se realizó previo estudio dimensional de las pastillas en verde y sinterizadas.

- b) Realización de curvas de prensado y sinterizado que definen los puntos de trabajo (presiones de compactado, temperaturas y tiempos de sinterizado), tanto en el polvo original, como en el granulado y en las distintas mezclas con U3O8 (Fig 3).

RESULTADOS

Cumplidas las etapas descriptas con polvos de UO₂ natural se dió lugar a la precipitación de los AUC enriquecidos. En la fig 4 se observa la dispersión de las distribuciones de tamaño de partícula de cada partida de 5 Kg.

Dada la capacidad del horno de reducción disponible, cada partida de AUC fue dividida en 10 lotes de UO₂ de 250 g.

En la Fig 5 se muestra la dispersión de las curvas de distribución de tamaño de partícula de los lotes de UO₂, y en la Tabla II los valores de área y estequiometría obtenidos.

En la Fig 6 se muestran las micrografías correspondientes a pastillas de distinta densidad y con distintos porcentajes de U3O8. Se puede observar cualitativamente:

- a) la diferencia de porosidad en pastillas de distinta densidad.
- b) la porosidad de los polvos con agregado de U3O8, observándose la aparición de poros de mayor tamaño e irregulares.

En la Tabla III se observa la disposición final de las pastillas colocadas en las barras destinadas a la irradiación.

Comparando con la Tabla I, se observa que las características de las pastillas en cada barra respeta los objetivos, en relación al combustible, de la irradiación.

CONCLUSIONES

La demanda de pastillas combustibles para irradiación, dió lugar a una producción de pastillas de UO₂ a nivel de laboratorio que debió cumplir con estrictas condiciones en lo relativo a : 1.- Características físicas de los polvos de UO₂ enriquecido empleados. 2.- especificaciones y características de las pastillas de UO₂ sinterizadas en relación con los objetivos de la irradiación.

Por otra parte dió lugar a: 3.-la fabricación de polvos y pastillas en pequeña escala, semejantes a los de producción. 4.-la puesta a punto de técnicas de fabricación y equipos como: conversión y pasivado, rectificación de pastillas.

5.- la identificación de los parámetros de fabricación críticos así como los controles necesarios para verificar su constancia.

6.- la definición de las propiedades y los procedimientos necesarios para el control de calidad de pastillas y polvos de UO_2 , así como aquellas convenientes para el desarrollo de procesos.

TIPO DE PARAMETRO	OBJETIVO
Geométrico	Comparación del comportamiento de simple dishing y doble dishing
Porosidad	Evolución de porosidad en pastillas con diferente densidad, con y sin U3O8 como aditivo.
Gases	Observar la evolución de gases en barras con distinta densidad promedio.
Polvo de origen	Diferencia de comportamiento de pastillas fabricadas con polvos vía elución aminada, granulados.
Impurezas	Influencia del S como impureza sobre el comportamiento de la barra combustible.
Estabilidad dimensional	Calibración del test de resinterización con la densificación real dentro del reactor.

TABLA 1

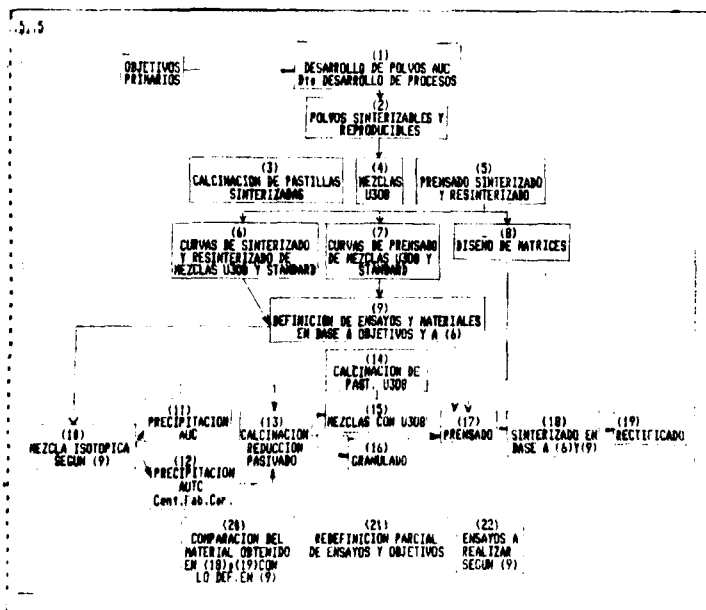


Fig. 1

PARAMETROS SECUNDARIOS DE PROCESO	CORRIENTE HORNO		VIBRACION PRESION DE ACEITE LUBRICACION EXTERNA E INTERNA SOBREPRESION DE EXTRACCION			
PARAMETROS DE PROCESO	GAS FLUJO RESIDENCIA VELOCIDAD DE ENTRADA	GAS FLUJO RESIDENCIA VELOCIDAD DE ENTRADA	GAS DE PASIVADO PASIVADO PASIVADO IMPUREZAS DEL GAS	PRESION	RESIDENCIA RANPA SUBIDA FLUJO GAS IMPUREZAS DEL GAS	SECAO SECAO PRESION DE SECAO
	PRECIPIT. CALCINACION		REDUCCION PASIVADO - GRANULADO	PRESABO - SINTER.	RECTIF. SECAO	
CARACTERISTICAS DE LOTE	DETERMINACION DE FORMULA IMPUREZAS		AREA IMPUREZAS MAREDA DENSIDAD APARENTE DENSIDAD TAP FLUIDEZ	DENSIDAD VERDE DIMENSIONES	DENSIDAD TAMAÑO MOLTO DE GRANO	DIAMETRO IMPUREZAS
CARACTERISTICAS DE CONTROL DE PROCESO	DISTRIBUCION DE TAMAÑO DE PARTICULA MORFOLOGIA		DISTRIBUCION DE TAMAÑO DE PARTICULAS MORFOLOGIA DISTRIBUCION INTERNA DE POROS		ENSAYO DE RESINTERIZACION DISTRIBUCION DE TAMAÑO DE POROS DISTRIBUCION DE TAMAÑO DE GRANO POROSIDAD ABIERTA	
PARAMETROS DE INSTRUMENTACION			DISTRIBUCION: (Y LIQUIDO VISCOSIDAD DEL LIQUIDO)		DENSIDAD Y BANO; ETC.	

Fig. 2

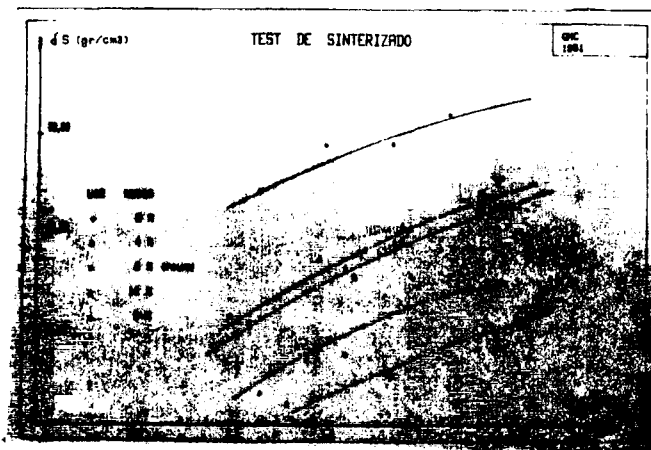


Fig. 3

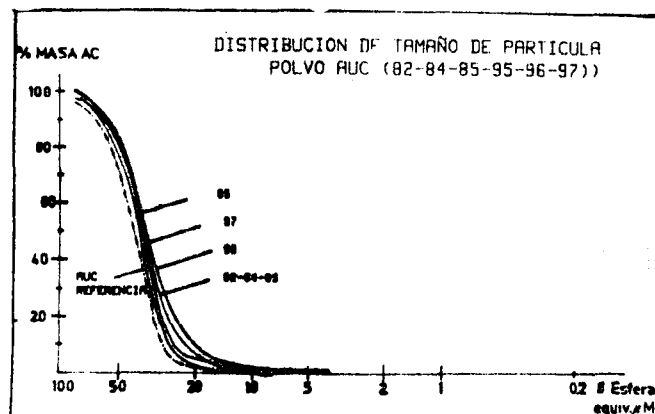


Fig. 4.

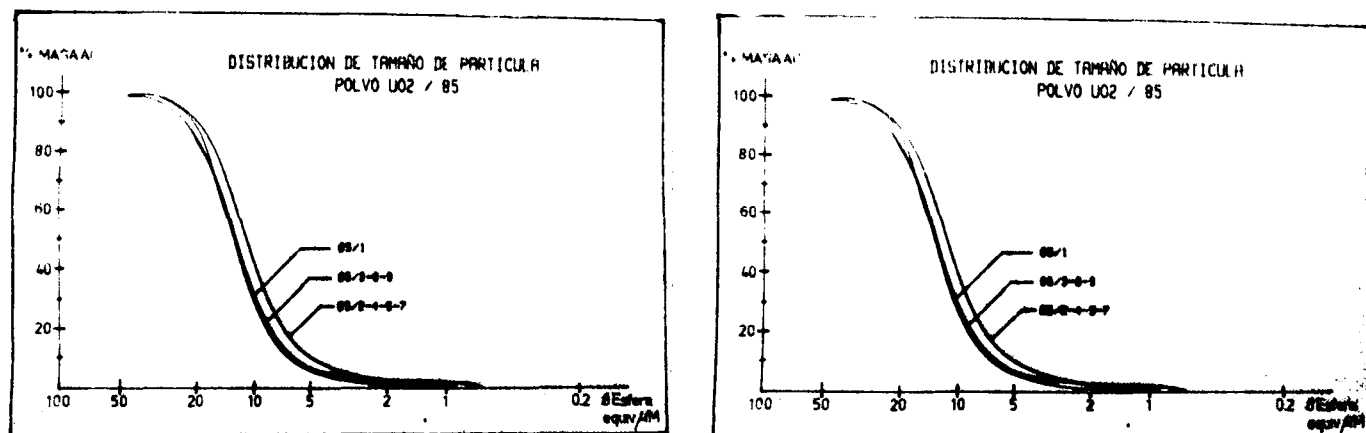
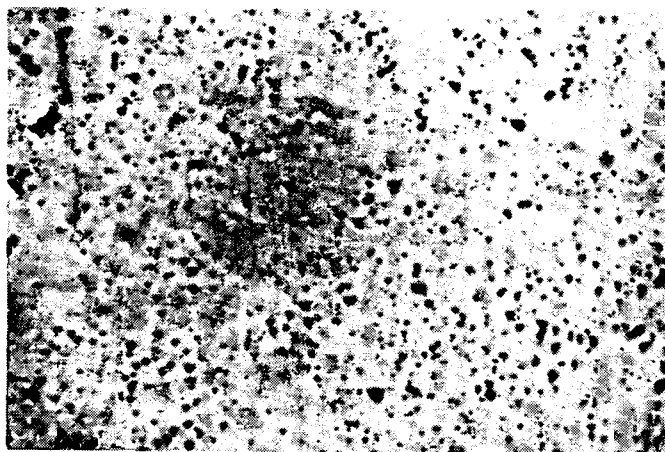


Fig 5

POLVO	AREA ESPECIFICA (m2/g)	ESTEQUEOMETRIA	POLVO	AREA ESPECIFICA (m2/g)	ESTEQUEOMETRIA	POLVO	AREA ESPECIFICA (m2/g)	ESTEQUEOMETRIA
AUC 82	7,34	2,07	AUC 83	7,27	2,07	AUC 84	7,23	2,07
	6,77	2,06		5,38	2,11		6,88	2,08
	7,11	2,08		6,01	2,10		6,72	2,05
	7,53	2,06		6,92	2,07		5,49	2,06
	6,75	2,08		6,47	2,12		6,44	2,08
	6,20	2,05		6,39	2,07		5,32	2,06
	6,33	2,12		5,22	2,08		6,18	2,07
	5,72	2,08		6,47	2,07		5,87	2,09
	5,95	2,07		6,08	2,06		5,41	2,06
$\bar{A}=6,33$ $\sigma_A=0,63$ $\bar{X}=2,07$ $\sigma_X=0,02$			$\bar{A}=6,12$ $\sigma_A=0,75$ $\bar{X}=2,09$ $\sigma_X=0,02$			$\bar{A}=6,10$ $\sigma_A=0,74$ $\bar{X}=2,07$ $\sigma_X=0,01$		
POLVO	AREA ESPECIFICA (m2/g)	ESTEQUEOMETRIA	POLVO	AREA ESPECIFICA (m2/g)	ESTEQUEOMETRIA	POLVO	AREA ESPECIFICA (m2/g)	ESTEQUEOMETRIA
AUC 85	6,84	2,08	AUC 95	6,06	2,09	AUC 96	5,98	2,09
	8,59	2,09		6,24	2,07		6,75	2,07
	5,95	2,07		7,56	2,09		6,23	2,11
	6,57	2,05		5,86	2,09		6,98	---
	6,57	2,05		6,34	2,09		6,36	2,14
	7,18	2,11		6,50	2,08		6,44	2,10
	5,46	2,06		5,90	2,09		6,17	2,09
	5,80	2,07		6,63	2,07		6,17	2,09
	6,46	2,10		5,54	2,06		5,41	2,07
	5,73	2,09		5,87	2,10			
	$\bar{A}=6,52$ $\sigma_A=0,91$ $\bar{X}=2,08$ $\sigma_X=0,02$			$\bar{A}=6,52$ $\sigma_A=0,57$ $\bar{X}=2,08$ $\sigma_X=0,01$			$\bar{A}=6,26$ $\sigma_A=0,46$ $\bar{X}=2,09$ $\sigma_X=0,02$	
			POLVO	AREA ESPECIFICA (m2/g)	ESTEQUEOMETRIA			
			AUC 97	7,70	2,07			
				6,98	2,10			
				6,52	2,06			
				6,52	2,06			
				5,54	2,06			
			$\bar{A}=7,07$ $\sigma_A=0,59$ $\bar{X}=2,08$ $\sigma_X=0,02$					

Tabla II



UO_2 Sinterizado (d = 10.50)
x 1000



UO_2 Sinterizado (d=10.64)
x 1000

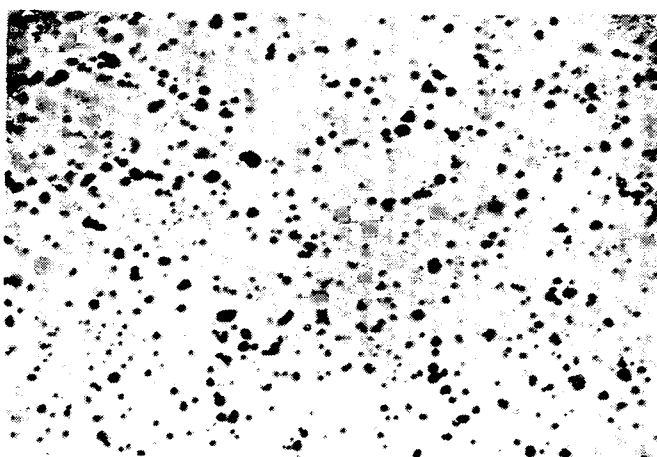
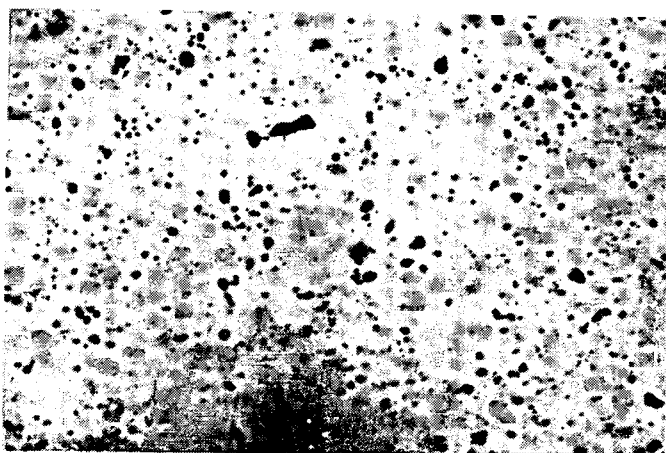
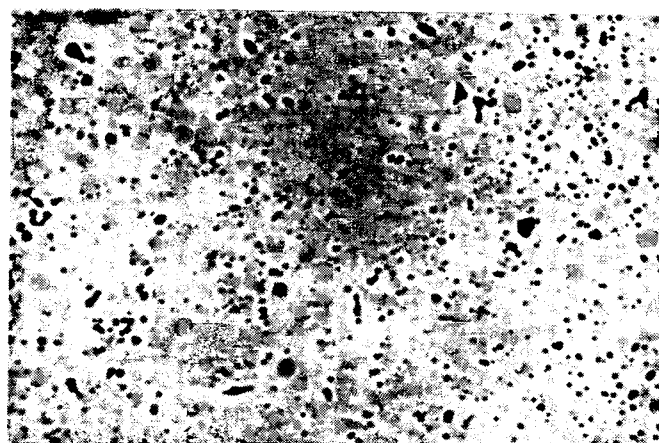


Fig. 6

UO_2 Sinterizado (d=10.71)
x 1000



UO_2 Sinterizado (d=10.65)
4% U_3O_8 x 1000



UO_2 Sinterizado (d=10.53)
4% U_3O_8 x 1000



UO_2 Sinterizado ($\bar{d}=10.48$)
4% U_3O_8 x 1000



UO_2 Sinterizado ($\bar{d}=10.48$)
8% U_3O_8 x 1000

TABLA III

DIAMETRO PASTILLA	TIPO DE DISHING	U3O8	TIPO POLVO	$\bar{d}(\text{g/cm}^3)$	$\bar{d}(\text{g/cm}^3)$
12,16	SIMPLE	--	AUC	10,53	10,47-10,58
12,16	SIMPLE	--	AUC	10,54	10,46-10,60
12,16	SIMPLE	--	AUC	10,60	10,49-10,73
12,16	SIMPLE	--	AUC	10,65	10,60-10,71
12,16	SIMPLE	--	AUC	10,66	10,60-10,72
12,16	DOBLE	8%	AUC	10,54	10,45-10,61
12,15	DOBLE	4%	AUC	10,57	10,45-10,66
12,16	DOBLE	--	AUTC Granul. Granul. AUC	10,59	10,46-10,75
12,16	DOBLE	--	AUC	10,62	10,46-10,72
12,14	DOBLE	--	AUC	10,58	10,46-10,68
12,14	DOBLE	--	AUC	10,60	10,57-10,71
12,13	DOBLE	--	AUC	10,60	10,48-10,69