

| C. N. E. A. Biblioteca |      |
|------------------------|------|
| ARCHIVO PUBLICACIONES  |      |
| Nº                     | AÑO  |
| 1                      | 1984 |

EXPERIENCIAS DE GRANULACION DE POLVOS AUC  
DE ORIGEN NACIONAL

N. Boero, G. Leyva, R. Cerigioni, D. Vidal, L. Recalde,  
J. Celora, A. Boselli, A. Marajofsky

En CNEA (Dirección Suministros Nucleares, Dirección Investigación y Desarrollo), se ha encarado un programa de desarrollo de polvos de  $UO_2$  para la fabricación de pastillas a ser utilizadas en elementos combuéstibles para reactores de potencia.

Dicho desarrollo se basa en la obtención de AUC (Uranil tricarbonato de Amonio) como precursor de los polvos de  $UO_2$  por la vía de elucción aminada.

Hasta el momento los polvos de  $UO_2$  obtenidos por esta vía alcanzan en algunas partidas el límite inferior especificado ( $10,45 \text{ g/cm}^3$ ), pero están por debajo de la densidad de los polvos actualmente utilizados en PPFCN (Planta Piloto de Fabricación de Elementos Combustibles) ( $10,60$  a  $10,70 \text{ g/cm}^3$ ).

Para permitir que los polvos nacionales sean utilizados industrialmente es necesario incrementar la densidad a que arriban las pastillas fabricadas con los mismos. Ello se ha encarado por dos vías de desarrollo:

- Ajuste de las condiciones de precipitación de AUC y conversión a  $UO_2$  para la obtención de un polvo de compactación directa.
- Con los polvos en el estado actual, adición de una etapa de granulación.

En este trabajo nos referiremos a los resultados obtenidos siguiendo la segunda vía.

El proceso de granulación para un polvo consiste en prensado a presiones inferiores a la presión de compactación normalmente utilizada; las pastillas así obtenidas son pasadas por una granuladora o trituradora. Este proceso es normalmente utilizado en líneas de fabricación de pastillas con polvos de buena sinterabilidad pero mala fluidez. La granulación tiene por objeto uniformizar los distintos lotes de polvo e incrementar su fluidez. Esta última propiedad es importante para asegurar la reproducibilidad en la etapa de prensado (igualdad de llenado de la matriz). Al aplicar la granulación a los polvos de nuestro interés (ex AUC) se pudo observar (como era dable esperar) no sólo un mejoramiento de la fluidez sino también de las propiedades de sinterabilidad de los mismos.

#### PARTE EXPERIMENTAL

Las variables de proceso en la granulación son la presión de precompactación y el tamaño de la malla utilizada en la trituración. En esta experiencia se utilizó una malla fija y fue variada la presión de precom-

pactado: 1,2,3,4,5 y 8 Mp. Las presiones normales de compactado directo de estos polvos se encuentran entre 7 y 8 Mp.

Se empleó una granuladora Erweka que permite granulación en húmedo y en seco. En nuestro caso se empleó granulación en seco. Con el polvo granulado para cada presión de precompactado se realizó un test de sinterabilidad en horno continuo. Junto con los polvos granulados se sinte-rizó además el polvo original de AUC y un polvo de referencia de sinte-rabilidad conocida y también ex AUC. Las pastillas sinterizadas fueron pulidas para la observación de porosidad y luego sometidas a un ataque térmico para revelar su grano. Algunas de ellas fueron sometidas al test de resinterización.

## RESULTADOS Y DISCUSION

En las Figs. 1 y 2 y en la Tabla I pueden verse los resultados de los tests de prensado y sinterizado. La densidad en verde aumenta al aumentar la presión de precompactado. La densidad de sinterizado aumenta hasta un valor de la presión de precompactado (4 Mp) y luego disminuye ligeramente. Los resultados muestran además que el incremento de la densidad de sinterizado con relación al polvo original es notable, siendo aún inferior a la densidad alcanzada por el polvo de referencia.

En la observación micrográfica de las pastillas se aprecia:

- a) La porosidad se encuentra homogéneamente distribuida y en las pastillas fabricadas con polvo granulado los poros son menos irregulares que los poros de las pastillas hechas con polvo de referencia (figs 3 y 4).
- b) El tamaño medio de grano tomado en una sección plana es de  $11\ \mu\text{m}$  siendo el tamaño medio del polvo de referencia de  $6\ \mu\text{m}$  Figs. 5 y 6
- c) La porosidad es preferencialmente intragranular, siendo intergranular la de polvo de referencia. Figs. 6 y 7 .

Tanto la obtención de un tamaño de grano mayor como la porosidad intragranular son propiedades que favorecerían la más lenta evolución de los gases de fisión y por lo tanto una mejor performance del combustible.

Los resultados del test de resinterizado, Tabla II muestran que la estabilidad dimensional de este tipo de pastillas es satisfactorio (menor que 1%) y equivalente a la del polvo de referencia. Ello se debe a la ausencia de porosidad fina ( $< 1\ \mu\text{m}$ ).

Si comparamos la microestructura de los granos del polvo original (Fig. 8 ) con la del polvo granulado (Figs 9-10) se observa que la del último es más compacta. Dicha microestructura es provocada en la etapa de precompactado.

La nueva distribución de tamaño de partícula (Figs 11,12) se encuentra en un rango más ancho de tamaños (Fig. 13 ) habiéndose desplazado su

límite inferior; el aumento de partículas pequeñas se traduce en un incremento del área, Tabla III .

El incremento de fluidez y compacidad (densidad aparente) se evidencia en la misma tabla.

### CONCLUSIONES

La conclusión de la etapa de precompactado y granulado a polvos ex-AUC de origen nacional producidos por la vía de elución aminada, incrementa significativamente la densidad de las pastillas resultantes (en promedio de  $10,30 \text{ g/cm}^3$  a  $10,60 \text{ g/cm}^3$ ) permitiendo en principio que estos polvos sean utilizados a nivel de producción industrial. Dos puntos restaría investigar:

- a) Si la densidad de pastillas puede incrementarse con partidas de polvo que arrojen densidades del orden del  $10,40 \text{ gr/cm}^3$ .
- b) Especificación del AUC que asegure la obtención uniforme de pastillas de  $\text{UO}_2$ .

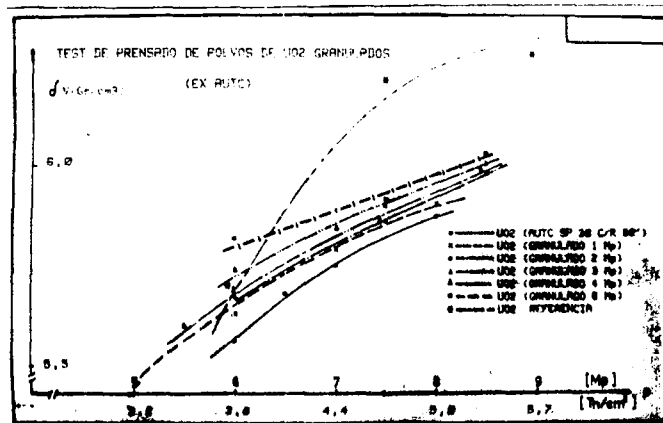


Fig. 1

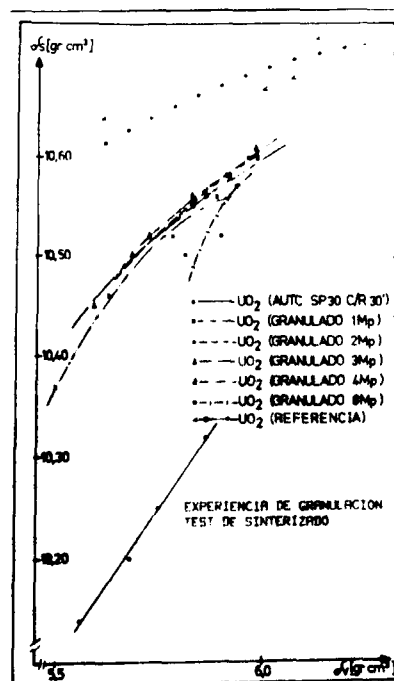


Fig. 2

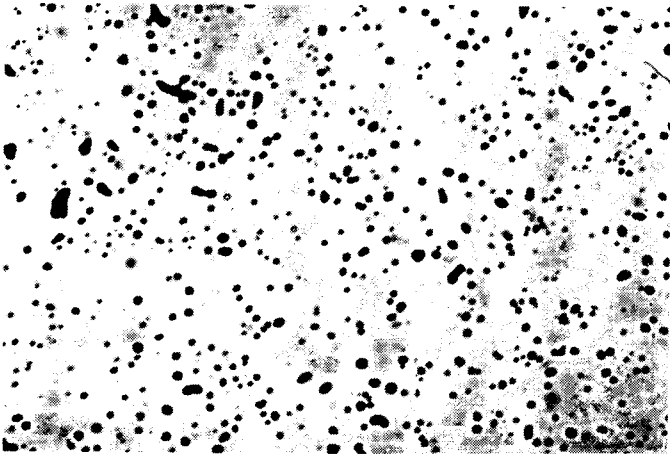


Fig. 3, Granulado.  
x 1000

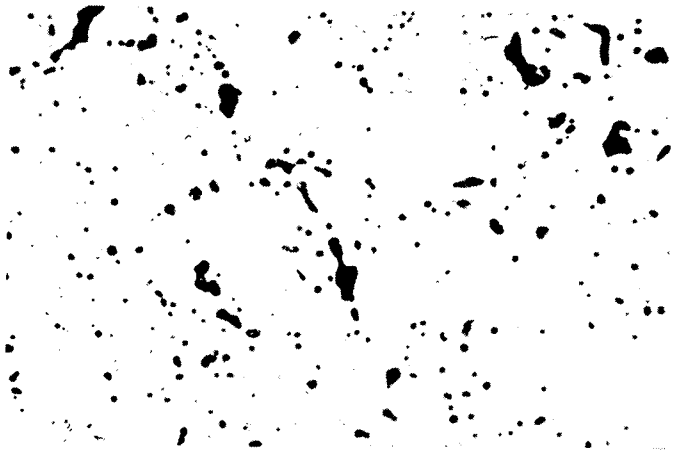


Fig. 4  
Referencia. x 1000

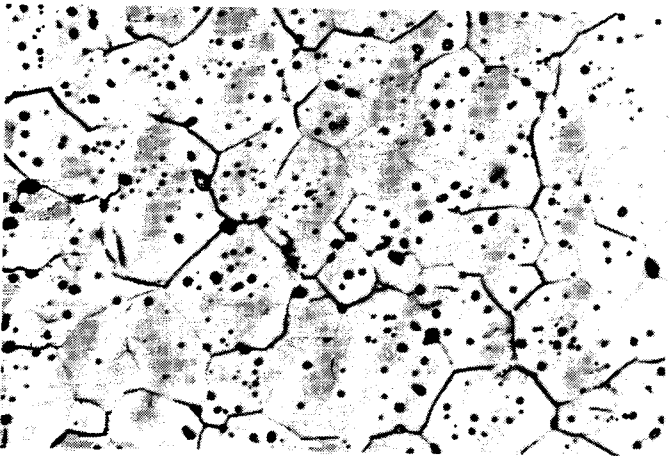


Fig. 5 Gran. (5 Mp)  
Revelado de grano x 1000

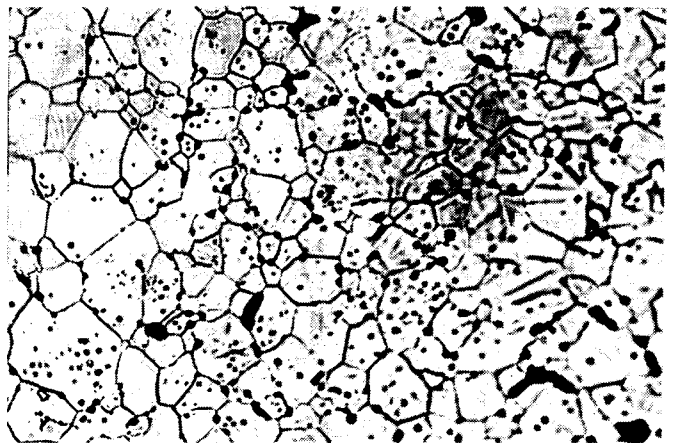


Fig. 6  
Referencia  
Revelado de grano x 1000

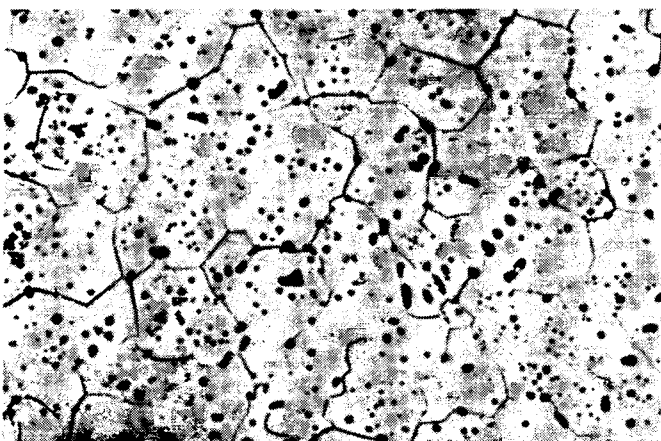


Fig. 7 Gran. (2 Mp)  
Revelado de grano x 1000



Fig 8 UO<sub>2</sub>(IDAUTC P30)  
x 1600

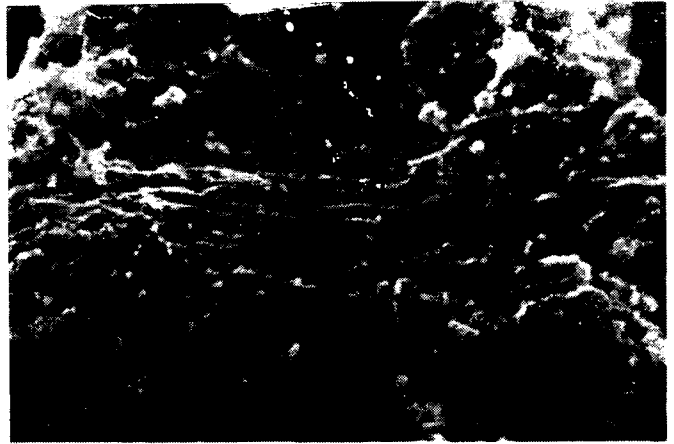


Fig 9 UO<sub>2</sub> granulado ( 4Mp)  
x 3400

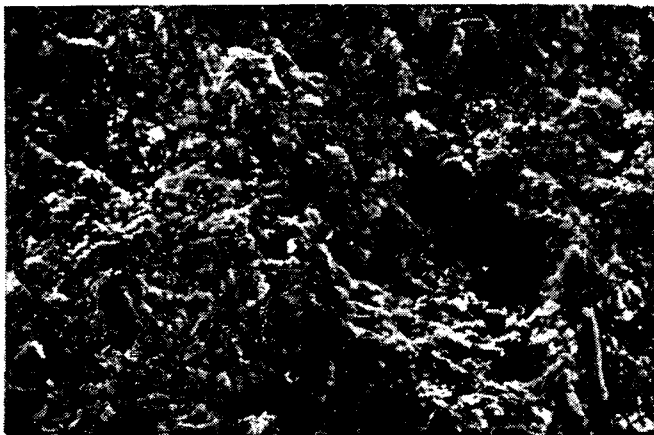


Fig 10 UO<sub>2</sub> granulado (5 Mp)  
x 800

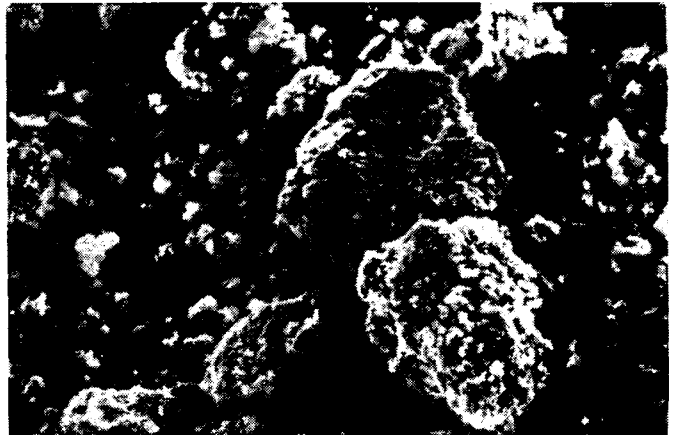


Fig 11 UO<sub>2</sub> granulado (4 Mp)  
x 850



Fig 12 UO<sub>2</sub> AUTC P30 x200

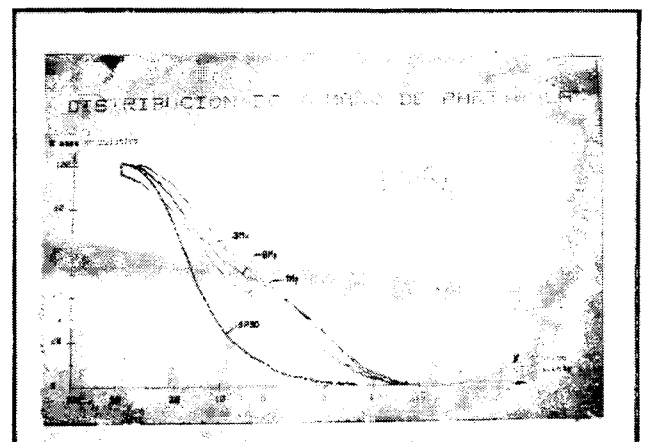


Fig 13

| Polvo                                    | Presión <sub>2</sub><br>(Tn/cm <sup>2</sup> ) | δv<br>(g/cm <sup>3</sup> ) | δs<br>(g/cm <sup>3</sup> ) |
|------------------------------------------|-----------------------------------------------|----------------------------|----------------------------|
| UO <sub>2</sub> (AUTC SP30 C/R 30')      | 3.8                                           | 5.56                       | 10.14                      |
|                                          | 4.1                                           | 5.68                       | 10.20                      |
|                                          | 4.4                                           | 5.75                       | 10.25                      |
|                                          | 5.1                                           | 5.87                       | 10.32                      |
| Granulado<br>(P=0.6 Tn/cm <sup>2</sup> ) | 3.1                                           | 5.50                       | 10.37                      |
|                                          | 3.8                                           | 5.63                       | 10.46                      |
|                                          | 4.4                                           | 5.78                       | 10.52                      |
|                                          | 5.1                                           | 5.90                       | 10.58                      |
| Granulado<br>(P=1.2 Tn/cm <sup>2</sup> ) | 3.8                                           | 5.67                       | 10.48                      |
|                                          | 4.2                                           | 5.84                       | 10.55                      |
|                                          | 5.3                                           | 5.98                       | 10.60                      |
| Granulado<br>(P=1.9 Tn/cm <sup>2</sup> ) | 3.8                                           | 5.59                       | 10.45                      |
|                                          | 3.8                                           | 5.69                       | 10.50                      |
|                                          | 4.2                                           | 5.86                       | 10.56                      |
|                                          | 5.3                                           | 5.98                       | 10.60                      |
| Granulado<br>(P=2.5 Tn/cm <sup>2</sup> ) | 3.8                                           | 5.73                       | 10.52                      |
|                                          | 4.4                                           | 5.84                       | 10.56                      |
|                                          | 4.2                                           | 5.89                       | 10.57                      |
|                                          | 5.3                                           | 6.01                       | 10.61                      |
| Granulado<br>(P=3.1 Tn/cm <sup>2</sup> ) | 3.8                                           | 5.76                       | 10.51                      |
|                                          | 4.2                                           | 5.92                       | 10.58                      |
|                                          | 5.2                                           | 6.02                       | 10.60                      |
| Granulado<br>(P=5.1 Tn/cm <sup>2</sup> ) | 3.8                                           | 5.82                       | 10.50                      |
|                                          | 4.2                                           | 5.91                       | 10.53                      |
|                                          | 5.2                                           | 6.02                       | 10.57                      |

Tabla I

CHARACTERISTICS PHYSICS DE LOS POLVOS  
DE UO<sub>2</sub> GRANULADOS

| Polvo                                           | Area<br>(m <sup>2</sup> /g) | Q/U  | δap<br>(g/cm <sup>3</sup> ) | Fluidez<br>(g/seg) |
|-------------------------------------------------|-----------------------------|------|-----------------------------|--------------------|
| UO <sub>2</sub> (AUTC SP30 C/R30')              | 6.40                        | 2.12 | 2.10                        | 12.0               |
| UO <sub>2</sub> Gran. (633 kg/cm <sup>2</sup> ) | 6.69                        | 2.12 | 2.05                        |                    |
| UO <sub>2</sub> Gran. (1.2 Tn/cm <sup>2</sup> ) |                             |      | 2.15                        |                    |
| UO <sub>2</sub> Gran. (1.9 Tn/cm <sup>2</sup> ) | 6.82                        | 2.13 | 2.15                        |                    |
| UO <sub>2</sub> Gran. (2.5 Tn/cm <sup>2</sup> ) |                             |      | 2.33                        |                    |
| UO <sub>2</sub> Gran. (3.1 Tn/cm <sup>2</sup> ) |                             |      | 2.47                        | 31.6               |
| UO <sub>2</sub> Gran. (5.1 Tn/cm <sup>2</sup> ) | 7.37                        | 2.13 | 2.53                        | 31.1               |

Tabla III

| POLVO                  | S     | R     | ΔP / ρ % |
|------------------------|-------|-------|----------|
| ID AUTC P30<br>C/R 30' | 10.32 | 10.58 | 2.52 %   |
| GRANULADO              |       |       |          |
| 1Mp                    | 10.56 | 10.67 | 1.04 %   |
| 2Mp                    | 10.60 | 10.69 | 0.85 %   |
| 3Mp                    | 10.60 | 10.66 | 0.57 %   |
| 4Mp                    | 10.61 | 10.72 | 1.03 %   |
| 5Mp                    | 10.60 | 10.72 | 1.13 %   |
| 8Mp                    | 10.56 | 10.65 | 0.85 %   |

Tabla II