

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº	AÑO
1	1982

609

04.82.39

CARACTERIZACION DE POLVOS DE URANILCARBONATO DE AMONIO PRODUCIDOS A ESCALA DE LABORATORIO

G. LEYVA; M. ALVAREZ NICOLINI; J. CELORA; A. MARAJOFSKY

CNEA - Gerencia de Desarrollo - Departamento Combustibles Nucleares

I - INTRODUCCION

El Departamento Combustibles Nucleares, conjuntamente con el Dpto. Desarrollo de Procesos y el Centro Fabril Córdoba, encaró un programa de obtención de Uranilcarbonato de Amonio precursor del polvo de UO₂, a través de dos vías:

- 1) Precipitación a partir de una solución de Nitrato de Uranilo.
- 2) Precipitación por elución de una fase orgánica aminada.

El propósito de esta experiencia es:

- a) Apreciar la posibilidad, de cada uno de los procesos, de arribar a un producto similar al RBU.
- b) Determinar la reproductibilidad de ambos procesos a escala de laboratorio; conocida la misma, se puede utilizar esta escala para el procesamiento de pequeñas cantidades de material enriquecido para su posterior prueba y estudios de performance en experiencias de irradiación.
- c) En la elaboración de un plan de aseguramiento de calidad, resulta de importancia la asignación de dispersiones inherentes a cada etapa de la producción, para estimar su influencia sobre la dispersión del producto final, en este caso, la pastilla de UO₂.

Si bien el factor de escala es un elemento importante en la fijación de condiciones de trabajo, la utilización de ensayos a escala de laboratorio permite encontrar la posibilidad de realización de un proceso o de obtención de un tipo de precipitado y, por otra parte, la sensibilidad del producto resultante a la variación de los distintos parámetros de fabricación.

La existencia de un producto determinado (RBU), que cumple con las condiciones exigidas (el proceso de fabricación de pastillas de UO₂ en la Fábrica de Elementos Combustibles está adaptado a este tipo de polvo), nos fuerza a perseguir la obtención de un producto similar, independiente de que otros productos precipitados posean adecuadas propiedades de sinterabilidad (en particular, ya han sido obtenidas partidas por precipitación de una fase orgánica cargada (AUTC-CFC) con buena sinterabilidad (AATN 1978 - AATN 1979).

La necesidad de arribar a un producto determinado de AUC, puede

ser una condición ventajosa, en cuanto no implica la conversión a UO₂ y el sinterizado para observar la bondad del mismo en la pastilla, pero presenta el inconveniente de tener que obtener un producto específico en condiciones diferentes o con un proceso distinto.

Para llegar al producto que nos interesa (UO₂ RBU), y dada la complejidad de los procesos involucrados, se decidió asegurar, en primer lugar, la similitud del AUC precipitado por ambos métodos con el AUC RBU; para ello, es necesario definir las variables que identifican al producto o, por lo menos, que serán determinantes en la producción del UO₂ resultante.

Dichas variables son:

- identidad estructural
- pureza nuclear
- morfología de los granos
- distribución de partícula

Analizaremos cada uno de estos elementos:

i.- En la figura (1) se observa el diagrama de Rayos X en una zona del espectro de los tres productos en consideración: AUC RBU, AUC SP y AUTC CFC (realizados en el Laboratorio de Rayos X del Departamento de Materiales). Se observa la identidad estructural de estos productos.

Si bien la estructura es la misma en estos tres compuestos, la existencia de impurezas podría inducir cambios en el comportamiento térmico, que determina el pasaje del AUC a UO₂. En la Fig. (2) y Fig. (3) se observan termogramas y curvas de DTA de las tres muestras, donde se evidencia la semejanza de su comportamiento térmico. Los mismos se realizaron en atmósfera de Ar-7% H₂. (Proyecto Tecno Pu - Depto. Comb. Nucleares).

ii.- En el proceso AUC SP se recurre a materia prima purificada previamente - normalmente por el proceso TBP -; en cambio, el proceso AUTC sirve, a su vez, como purificador del yellow-cake. Las ventajas y desventajas de los dos procesos no serán discutidas en este trabajo.

En la mayor parte de las experiencias que se trata, se utilizó materia prima de pureza nuclear.

iii y iv.- Hay dos parámetros que identifican el polvo de AUC a los efectos genéticos de precursor de UO₂ y especialmente relacionados con su comportamiento en el prensado y la sinterización; ellos son: la distribución de tamaño de partículas y la morfología de las mismas. Si bien ambas características son responsables conjuntamente de la determinación del comportamiento de los polvos, en una primera aproximación podemos decir que, cada una de ellas, precisa, mayoritariamente, alguna de las propiedades importantes para la fabricación; así es, que la distribución de tamaño de partículas, va a condicionar

la compacidad del polvo y, por lo tanto, la densidad aparente del mismo, importante para fijar la capacidad de llenado de la matriz de prensado. La distribución de tamaño de partícula, por otra parte, va a ser responsable de la creación de la porosidad interparticular que se transformará, después del sinterizado, en la porosidad de la pastilla. La morfología de las partículas contribuirá, particularmente, a la fluidéz de un polvo, importante en la producción de alta velocidad de pastillas para la reproducibilidad de llenado de la matriz.

En relación con estas dos propiedades, vamos a describir, a continuación, la evolución de la optimización del producto a través de la interacción entre ensayos de laboratorio y caracterización, en los dos procesos mencionados (AUC SP y AUTC CFC).

Se pone especial énfasis en el papel que juega el bombeo de recirculación en el redondeo de las partículas. El mismo puede ser usado en serie o en paralelo con la precipitación (Fig. 4) - AUC (SP), siendo sólo posible en serie en el proceso AUTC (CFC), por la formación de una emulsión entre las dos fases.

En las Figs. (5) y (6) se observa el producto al cual se desea llegar (RBU), Fig. (5), y un precipitado típico sin recirculación, Fig. (6).

II PROCESO AUC (SP)

Se condujo, tratando de obtener, en primer lugar, un producto similar al RBU y, luego, asegurando la reproducibilidad del proceso. Dentro de la escala de laboratorio, se ensayó en recipiente de dos tamaños. En la Fig (7) se observa la tendencia de los distintos modelos en tamaño pequeño, siendo la partida 56 el paso a precipitador de tamaño grande; en esta última distribución se observa, por primera vez, una aproximación al tipo de distribución de tamaño de partícula RBU: éste es el modelo fijado y el utilizado en adelante.

En la Fig (8) se observan las distribuciones correspondientes a las partidas 56-68, que son variaciones del modelo fijado, con la influencia de distintos parámetros (boquillas de inyección, tiempo y caudal de recirculación, etc); el apartamiento de las distribuciones entre ellas es menor que en la Fig. anterior. En la Fig. (9) se observan las distribuciones correspondientes a las partidas 68-81, en las cuales se ha cuidado de mantener todos los parámetros constantes. Se considera a esta dispersión en las distribuciones como características del proceso a esta escala. En la Fig. (10) se observan las distribuciones 82-85 realizadas con U enriquecido al 1.25%, a los efectos de una producción de 12 kg, a escala de laboratorio, para preparar pastillas para irradiación. Se observa que la dispersión se conserva y aún se mejora, lo que indica que, dentro de los límites fijados, la reproducibilidad del sistema se conserva. En las Figs. (11) y (12), se muestra la evolución equivalente de la morfología en el producto que se trata.

III PROCESO AUTC (CFC)

En este proceso los ensayos se condujeron tratando de obtener, en primer lugar, la reproducibilidad correspondiente al sistema, en

dos escalas: de laboratorio y de planta piloto pasando, luego, a la aproximación de la distribución de tamaño de partícula a la de RBU, etapa en la que se encuentra. Se realizaron, a escala de laboratorio, 5 partidas constituidas, cada una, de cinco lotes no redondeados y uno redondeado con el material de los cinco lotes previos. En la Fig. (13) se han superpuesto los lotes no redondeados y el redondeado correspondiente de una partida. Se observa que la operación de recirculación desplaza la curva de distribución hacia valores de menor tamaño.

En la Fig. (14) se muestran los lotes redondeados de cada una de las partidas y el redondeado mezcla, donde se resalta que el proceso de recirculación en serie minimiza la dispersión de las partidas redondeadas, en relación a las no redondeadas. La morfología de los productos de esta serie puede verse en la Fig. (15).

Luego de las pruebas de reproducibilidad a escala de laboratorio, y dado que el modelo empleado mostraba distribuciones menores que la RBU, se llegó al modelo 118-121 que, si bien se acerca más a la distribución buscada, muestra una diferencia de pendiente con la misma. Fig. (16).

En la escala de planta piloto, por ser de producción continua, la comparación se ha realizado entre muestras obtenidas en cada uno de los cuatro filtros en 24 horas de operación: esta operación se realizó cuatro veces. En la Fig. (17) se observa la diferencia entre muestras no redondeadas de cada filtro y su producto mezcla. La dispersión entre muestras no redondeadas es menor en escala de planta piloto que en laboratorio.

En la Fig. (18) se observa el efecto de distintos tiempos de redondeo. Se destaca, en las Figs. (19) y (20), la buena morfología obtenida con 30' de recirculación y el producto previo a la misma.

IV CONCLUSIONES

Experiencias a escala de laboratorio:

Se realizó la precipitación de AUC (Uraniltricarbonato de Amonio), por dos métodos diferentes; en ambos se procuró arribar a la distribución de tamaño de partícula y morfología deseadas, mediante la utilización del bombeo de recirculación, ya sea en paralelo o en serie.

En el primer caso, AUC (SP), la distribución es semejante a la del producto RBU; la morfología, en cambio, es más redondeada en el producto AUTC (CFC), siendo, sus distribuciones, desplazadas hacia valores menores de tamaño de partículas que el RBU por efecto de la recirculación en serie (modelo 47-101).

En cambio, el modelo 118-121 se acerca al producto RBU, pero con pendiente diferente.

Experiencias AUTC (CFC) a escala de laboratorio y de planta piloto:

Los productos no redondeados poseen menor dispersión en la escala de planta piloto que en la de laboratorio. El redondeo es satisfactorio en ambas escalas.

La distribución 118-121 de laboratorio se acerca más a la distribución RBU que el modelo redondeado de planta piloto, poseyendo, ambas distribuciones, pendientes distintas con respecto a la primera.

La evaluación de la importancia de estas desviaciones, sólo puede realizarse recurriendo a la conversión y sinterización de estos polvos.

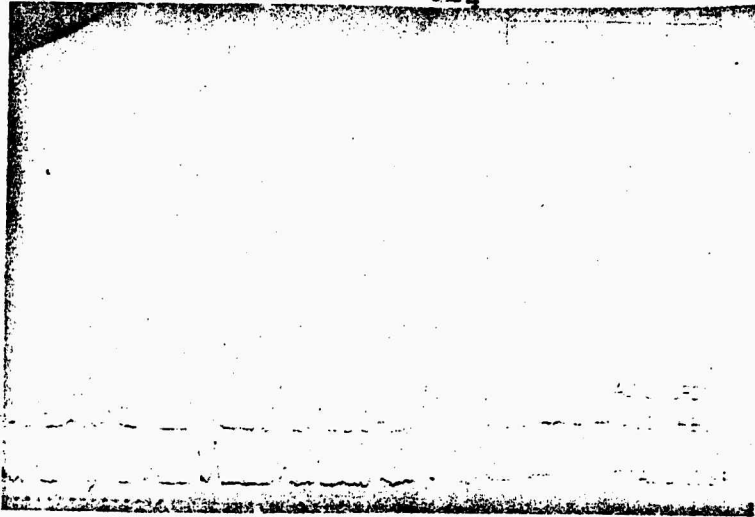


FIGURA 1

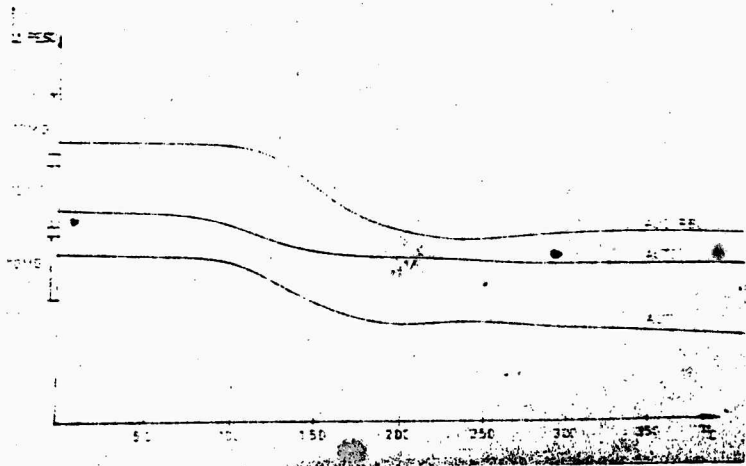


FIGURA 2

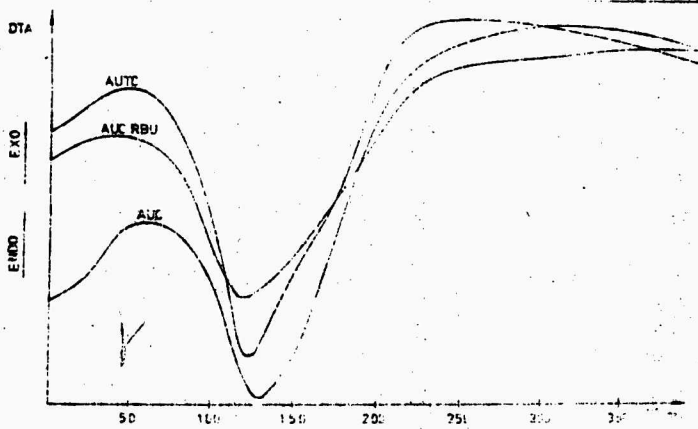


FIGURA 3

POSIBLES SECUENCIAS DE
PRECIPITACION Y RECIRCULACION
PARA AUC Y AUTC

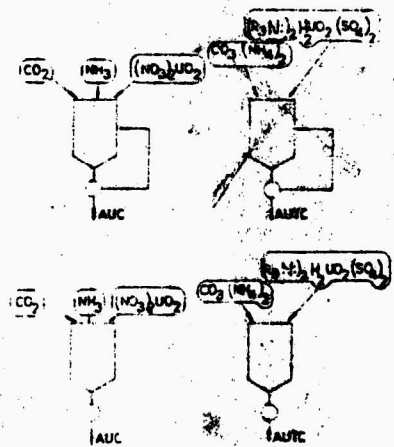


FIGURA 4



FIGURA 5

SL AUTO 52



FIGURA 6

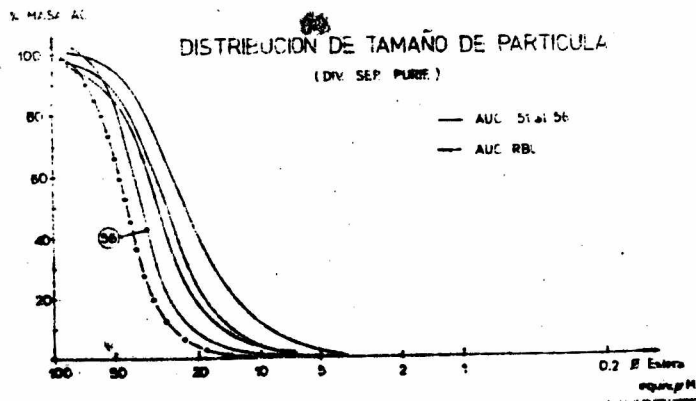


FIGURA 7

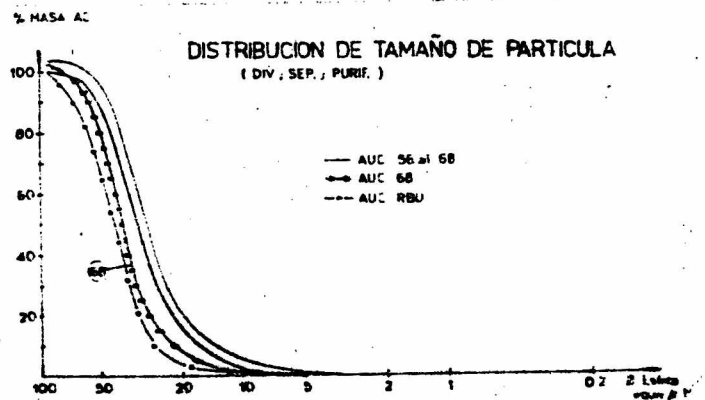


FIGURA 8

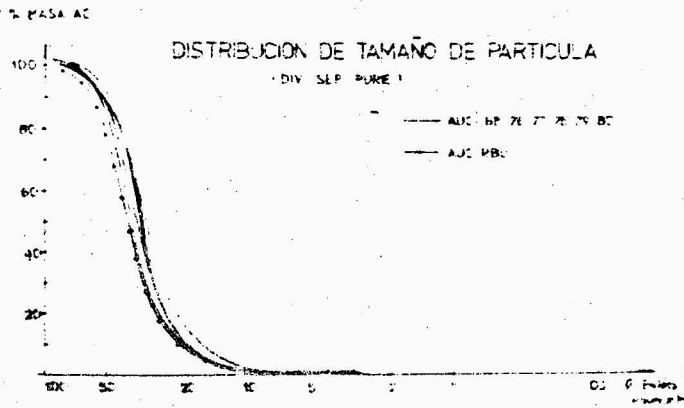


FIGURA 9

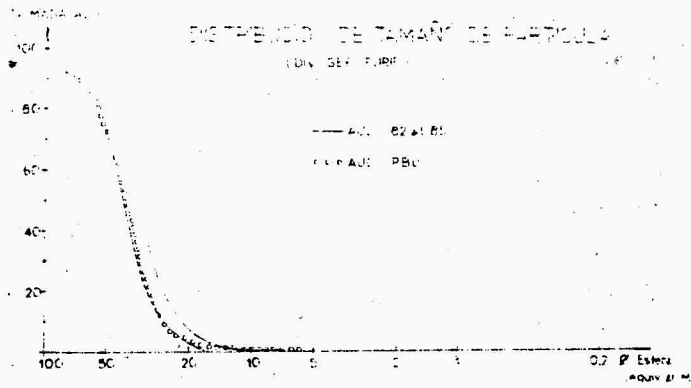


FIGURA 10



FIGURA 11

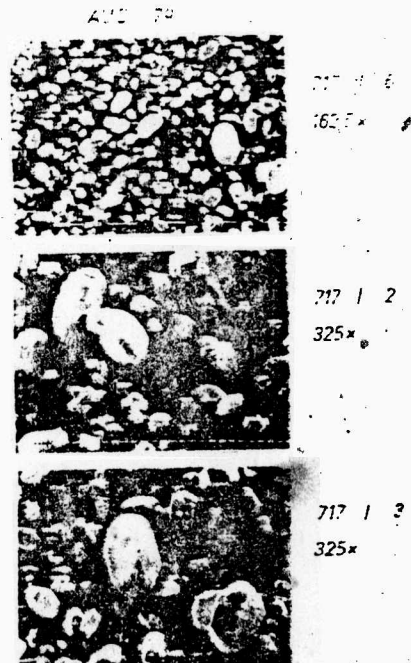


FIGURA 12

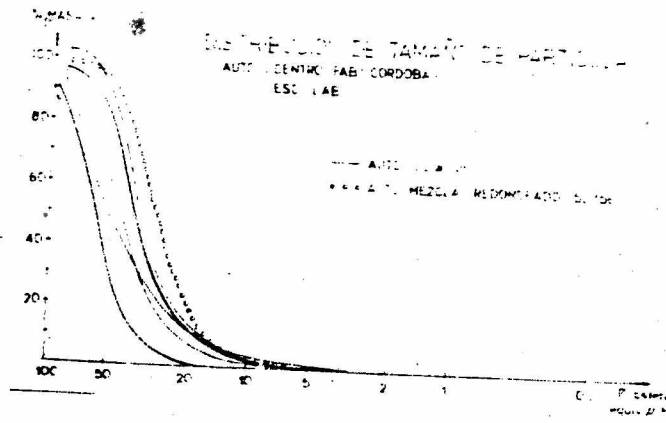


FIGURA 13

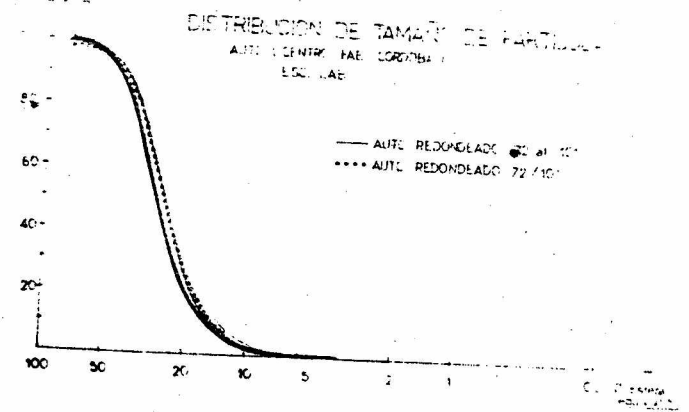


FIGURA 14

SL AUTC Redondeado 52 / 56

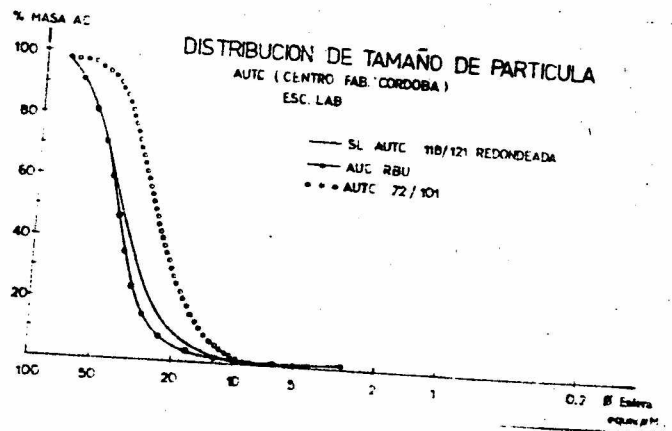
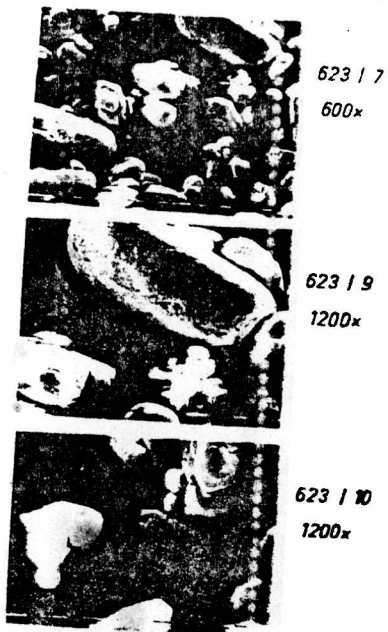


FIGURA 15

FIGURA 16

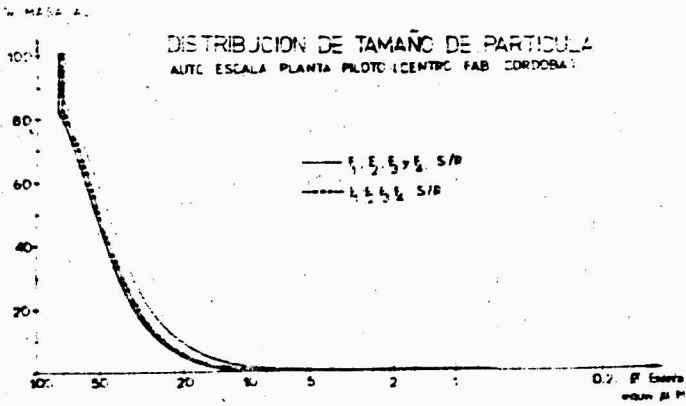


FIGURA 17

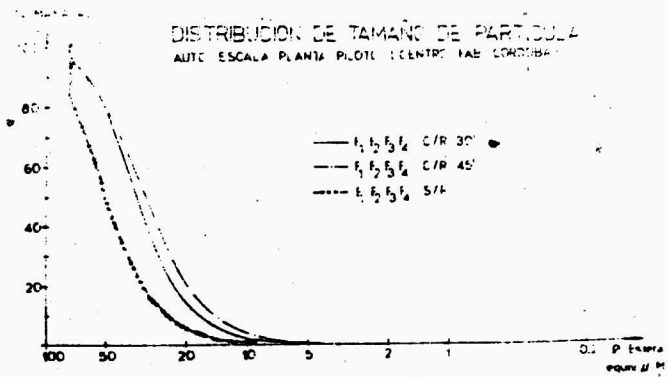


FIGURA 18

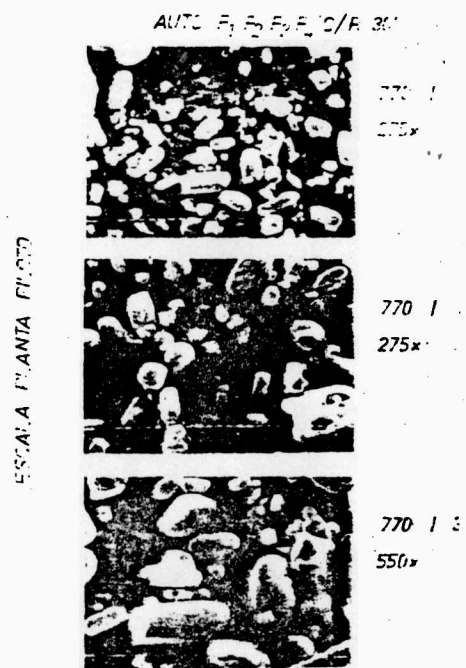
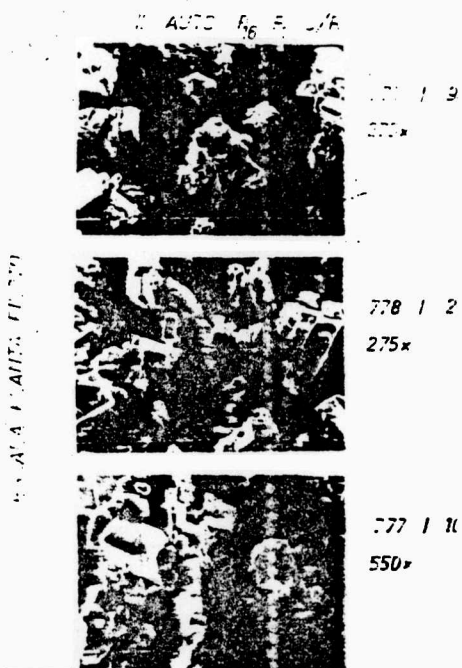


FIGURA 19

FIGURA 20