

04.70.21

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1970

Comisión Nacional de Energía Atómica
dependiente de la Presidencia de la Nación

FABRICACION DE PASTILLAS COMBUSTIBLES CERAMICAS DE UO_2

I. Dymant

IV Jornadas Metalúrgicas
Sociedad Argentina de Metales
Córdoba, noviembre de 1970

Departamento de Metalurgia
Buenos Aires - Argentina

Comisión Nacional de Energía Atómica
dependiente de la Presidencia de la Nación

FABRICACION DE PASTILLAS COMBUSTIBLES CERAMICAS DE UO_2

I. Dymant

IV Jornadas Metalúrgicas
Sociedad Argentina de Metales
Córdoba, noviembre de 1970

Departamento de Metalurgia
Buenos Aires - Argentina

FABRICACION DE PASTILLAS COMBUSTIBLES CERAMICAS DE UO_2

Isaac Dymont, Gerencia de Tecnología, CNEA.

INTRODUCCION

El primer paso en la fabricación de un núcleo cerámico para Elemento Combustible a partir de bióxido de uranio, es seleccionar la materia prima a utilizar. Esta deberá ser un polvo de pureza nuclear, apto para prensar y sinterizar o que se pueda adecuar a ello.

En principio, lo que se busca es una pastilla que cumpla con una serie de especificaciones previamente determinadas. Para ello, una vez seleccionado el polvo que reúna las condiciones mencionadas, se deben realizar ciertos ensayos -que se explican a continuación- para establecer el coeficiente de contracción en relación a la presión de prensado y temperatura de sinterizado.

En esta fabricación debe considerarse el diámetro, la altura, la concavidad de una de sus caras con un volumen dado y la disposición de dicha concavidad en la superficie frontal, el tamaño del grano, su porosidad, rugosidad superficial, etc., siempre teniendo en cuenta que las tolerancias en cualquiera de las dimensiones son muy bajas, del orden de la centésima.

I. Preparación del polvo

Una vez encontrado el polvo apto para esta fabricación, el mismo debe acondicionarse especialmente para el aglomerado, es decir, facilitar el prensado sin que perjudique la pureza del óxido y el sinterizado del mismo. Para ello se busca un determinado tamaño de partícula, área específica, densidad aparente y (tap) vibrada, fluidez, etc.

Generalmente este material se mezcla con un ligante. Comúnmente se utiliza algún estearato, luego se efectúa un prensado a baja presión (del orden de 1 ton/cm^2) y se vuelve a moler con el fin de obtener mayor densidad del polvo y mejorar la fluidez del mismo. Es aconsejable un tamizado entre mallas +20 -70 para obtener partículas homogéneas y evitar que fragmentos demasiado grandes impidan un llenado parejo de la matriz.

II. Ensayos de prensado y sinterizado

Preparado el polvo ya listo para ser usado y comprobadas las especificaciones químicas de impurezas, se realizan ensayos de prensado y sinterizado a fin de obtener una pastilla que se ajuste a las especificaciones de densidad, tamaño de grano, porosidad y aspecto superficial determinado. Las variables que se pueden ajustar para obtener resulta-

dos satisfactorios son: presión de compactado y temperatura de sinterizado. Estos valores son aproximadamente de 4 T por cm^2 y 1650°C respectivamente.

III. Diseño y cálculo de la matriz (Ver Anexo "A")

En realidad no se puede hablar de "diseño" puesto que el mismo está determinado por la forma de la pastilla ya que se trata de un proceso de pulvimetalurgia y como es ampliamente conocido en esta tecnología se elimina el proceso posterior de maquinado, por lo tanto se deben calcular las dimensiones de la matriz y sus pistones, teniendo en cuenta la contracción del material en el proceso de sinterizado, que es del orden del 13,5% en su volumen.

El cálculo se hace en base a los ensayos previos donde se han obtenido pastillas que cumplen tales especificaciones.

Una vez ajustadas la presión y la temperatura para un determinado lote de polvo, se calculan las dimensiones de la matriz en base a la contracción y distribución de densidades.

IV. Prensado de pastillas

Este es relativamente un paso sencillo puesto que generalmente se hace con una peletizadora automática en la que una vez ajustadas sus variables para obtener una pastilla semejante a las elegidas en los ensayos previos, su ciclo es repetitivo y lo único que debe controlarse es la alimentación de material a su tolva de carga. Se realiza asimismo un muestreo estadístico para controlar posibles variaciones.

Las variables que deben ajustarse de acuerdo a los cálculos son: altura, peso y distribución de densidades en la pastilla, para lo cual se debe controlar la presión en ambos pistones, superior e inferior puesto que se utiliza una prensa de doble efecto. La densidad requerida en las pastillas crudas es de $6 \pm 3\% \text{ gr/cm}^3$.

V. Presinterizado y sinterizado

El presinterizado, o mejor llamado "limpieza del ligante" es una operación previa al sinterizado. En este paso se trata de eliminar el aglomerante que se mezcló con el polvo y que tiene un punto muy bajo de evaporación. Se lleva a cabo en atmósfera inerte, preferentemente reductora con el objeto de evitar la contaminación de la cámara de sinterizado, lo cual se traduce en un aspecto deficiente en la superficie de las pastillas. Esto se hace a temperaturas entre 600 y 1000°C con un incremento de 100°C/h .

En el sinterizado, el proceso de difusión bastante lento que se produce a temperaturas superiores a los 1600°C y en atmósfera reductora, van disminuyendo los poros y emigrando hacia la periferia hasta desaparecer, obteniéndose así la densidad deseada.

El horno que se emplea es eléctrico, a resistencia de molibdeno y tanto puede ser continuo como por lote. La velocidad de pasaje es aproximadamente de 15 cm/h.

El tiempo de sinterización varía según el lote de polvo que se utiliza. El gradiente de temperatura es muy grande pues ésta debe aumentarse muy lentamente para evitar que queden poros atrapados en los bordes de grano o se produzcan fisuras por choque térmico ya que se trata de un material cerámico.

VI. Rectificado

Conseguir un diámetro igual en todas las pastillas en casi imposible, o dicho de otra manera, insumiría un costo muy elevado en horas/hombre y equipos, ya sea porque se dispone de distintos lotes de polvo o porque son muchas las variables a controlar y puesto que la tolerancia en diámetro es muy pequeña, se ha adoptado un paso más en el proceso de fabricación el cual consiste en el rectificado de la superficie lateral.

El desbastado de esa superficie es ínfimo y para ésto se emplea una rectificadora sin centros en donde se utiliza como refrigerante y/o lubricante, aceite soluble o lo que es más aconsejable, agua destilada para facilitar el lavado posterior. Este refrigerante actúa en un circuito cerrado con diversos filtros para luego poder recuperar la torta o polvo de desbastado y evitar así un gasto innecesario de lubricante.

Una vez puesta la máquina a punto el rectificado es un proceso rápido.

La alimentación se hace mediante una V en plano inclinado y la salida también se desliza por una V perforada donde recibe una lluvia de agua destilada limpia a fin de lavar el polvo de rectificado que pueda haber quedado adherido en su superficie.

La piedra tiene que tener un formato especial para evitar las cascaduras en los bordes. Se han probado diversos tipos de piedras pero la más aconsejable es de diamante.

VII. Inspección

En este proceso se revisan visualmente las pastillas y se separan las falladas ya sea por cascaduras, fisuras, sopladuras, poros grandes, etc.

Se separan en tres lotes: buenas, dudosas y malas. Las primeras van a lavado y las segundas se observan en microscopio o lupa y se vuelven a separar a su vez en aceptables y malas. Las primeras siguen el proceso anterior, las segundas van a recuperación del material.

VIII. Lavado

Una vez realizado este control preliminar, se pasan a lavado donde se las

sumerge primeramente en vapor de tricloroetileno para la grasitud que pudiera haber quedado del rectificado o por el contacto de las manos. Luego se sumergen en alcohol puro para permitir que en el siguiente lavado, el que se realiza con agua destilada y en ultra sonido, se produzca un mejor mojado de la superficie de las pastillas, puesto que se disminuye la tensión superficial.

IX. Secado

Después de este lavado se dejan escurrir las bandejas porta-pastillas y se introducen en estufa de vacío para su secado total, aunque antes de envainar las mismas se las seca nuevamente para eliminar toda la humedad que hubieran absorbido durante el transporte y que debe ser inferior a 20 ppm.

X. Medición de diámetros

Esta es una operación que generalmente no se realiza pues las pastillas son controladas en el rectificado y su tolerancia es $\pm 0,01$, pero para afinar más las especificaciones dadas y por consiguiente aumentar el margen de seguridad, se miden cada vaina y todas las pastillas con el fin de mantener una luz determinada en cada elemento que absorba las pequeñas diferencias de diámetro.

Esta medición se hace en forma continua en un banco de medición electrónico que funciona en base a "strenght gauge" -desarrollado por la Gerencia de Tecnología- donde se lee la milésima o en un medidor neumático en que también se aprecia la milésima.

XI. Embalaje

Los embalajes más comunes utilizados son cajas con planchas de espuma de poliuretano de buena calidad, es decir, que no se desgrana, perforado al diámetro de la pastilla que se acomoda verticalmente y se separan unas de otras por planchas lisas del mismo material.

Otra forma empleada es una bandeja de inoxidable acanalada donde se alojan horizontalmente las pastillas y también cada bandeja está separada por una capa de espuma. Las bandejas se acomodan dentro de un recipiente metálico con guías y herméticamente cerrado.

CONTROL PROCESOS

Este es un punto muy importante en la fabricación de un núcleo cerámico para elemento combustible, pues se trata de inspeccionar y controlar paso a paso los distintos procesos para mantenerse dentro de las especificaciones y asegurar la calidad.

A. Preparación del polvo

En este punto se controla por medios químicos la pureza, relación O/U, etc., y por medios físicos se mide el área específica, tamaño de partícula, porosidad, densidad aparente, tap (vibrada), fluidez, etc., que es lo que más influye desde el punto de vista de prensado y sinterizado. Además sirve para comparar los distintos lotes de polvo.

B. Prensado de pastillas

Un control estadístico durante el prensado permite vigilar las variaciones en el mismo, generalmente originadas por un deficiente llenado de la matriz debido a que las partículas del material son de forma irregular y su fluidez no es muy buena o ha absorbido humedad. Esto significa menor peso en la pastilla, lo cual se traduce luego del sinterizado en un diámetro y altura inferior al requerido. O sea que en este control las variables son H y peso.

C. Sinterizado

De la misma forma que en el proceso anterior, la inspección se realiza estadísticamente tomando como variables diámetro y altura. Con estos datos se puede ir haciendo un ajuste fino con la temperatura del horno que influye notablemente en las dimensiones.

Durante estas dos etapas de fabricación mediante un muestreo estadístico se extraen pastillas para controlar por metalografía, análisis químico y microsonda, impurezas, inclusiones, tamaño de grano, distribución de poros, etc.

D. Control de humedad

Esta última inspección nos determina la cantidad de humedad en las pastillas previo al envainado. Esta debe ser inferior a 20 ppm.

Es de hacer notar que las pastillas se secan nuevamente en vacío antes de cargar y el control se hace por muestreo estadístico.

ANEXO "A"

DISEÑO Y CALCULO DE LA MATRIZ 1er. PROTOTIPO CNEA MZFR

Se prensó un lote de 200 pastillas en 5 grupos de 40 unidades cada uno compactadas a distintas presiones, para obtener 5 densidades distintas, guiándonos por su aspecto superficial. Estas fueron de 5,3 - 5,6 - 5,8 - 6,0 y 6,2 gr/cm³. Por debajo de 5,3 y por sobre 6,2, las pastillas presentaban defectos en su superficie.

De cada uno de estos grupos se extranjerón muestras en forma estadística que, numeradas, fueron seguidas durante todo el proceso.

En primer lugar se midió el diámetro y la densidad de crudo; luego de sinterizar el lote en idénticas condiciones, se determinó nuevamente el diámetro y la densidad.

Con estos valores que figuran en el cuadro adjunto, se pudo obtener el coeficiente de concentración $\alpha = \frac{\phi_s}{\phi_c}$ para cada caso en particular.

Estos datos fueron llevados a dos gráficos: en el primero se dibujó la curva de $\delta_s = f(\delta_c)$ que ayudó, juntamente con la evaluación visual del comprimido (ausencia de fisuras, porosidad, sopladuras, etc.) a prefijar la densidad de crudo necesaria para obtener luego del sinterizado, valores de densidad acordes con las especificaciones y en el segundo se trazó la curva $\alpha = \phi_s / \phi_c = f(\delta_c)$ que sirvió para determinar las dimensiones de la matriz.

Debido a que la densidad final de las pastillas debe estar por encima del 95% de la teórica (10,9) y guiándonos también por el aspecto superficial de las mismas, se adoptó una densidad de crudo de $6 \pm 3\%$ gr/cm³.

Transportando este valor al segundo gráfico se determinó un $\alpha = 0,82$ mediante el cual se calcularon debidamente las dimensiones finales de la matriz.

Es de hacer notar que el diámetro elegido para los ensayos fue tomado arbitrariamente.

MEDICIONES FISICAS

Pastilla	δ crudo	δ sint	ϕ cr	ϕ sint	$\alpha = \phi_s / \phi_{cr}$
4	6.2	10.55	11.65	9.61	0.826
7	6.2	10.56	11.65	9.61	0.826
11	6.2	10.55	11.65	9.60	0.823
13	6.2	10.57	11.65	9.60	0.823
17	6.2	10.56	11.65	9.61	0.826
19	6.2	10.56	11.65	9.61	0.826
23	6.2	10.57	11.65	9.60	0.823
29	6.2	10.55	11.65	9.61	0.826
41	6.0	10.53	11.65	9.55	0.820
47	6.0	10.53	11.65	9.56	0.821
49	6.0	10.53	11.65	9.54	0.819
56	6.0	10.51	11.65	9.56	0.821
57	6.0	10.53	11.65	9.56	0.821
73	6.0	10.53	11.65	9.55	0.820
77	6.0	10.53	11.65	9.55	0.820
79	6.0	10.53	11.65	9.54	0.819
85	5.8	10.50	11.65	9.47	0.813
89	5.8	10.51	11.65	9.50	0.816
93	5.8	10.51	11.65	9.47	0.813
97	5.8	10.50	11.65	9.49	0.815
101	5.8	10.51	11.65	9.48	0.814
102	5.8	10.51	11.65	9.47	0.813
103	5.8	10.51	11.65	9.49	0.815
118	5.8	10.51	11.65	9.48	0.814
123	5.6	10.45	11.64	9.37	0.803
129	5.6	10.42	11.64	9.36	0.801
131	5.6	10.43	11.64	9.36	0.801
133	5.6	10.43	11.64	9.37	0.803
135	5.6	10.44	11.64	9.37	0.803
147	5.6	10.43	11.64	9.37	0.803
150	5.6	10.43	11.64	9.36	0.801
155	5.6	10.45	11.64	9.36	0.801
161	5.3	10.37	11.64	9.26	0.792
163	5.3	10.37	11.64	9.27	0.793
171	5.3	10.36	11.64	9.26	0.792
179	5.3	10.38	11.64	9.26	0.793
184	5.3	10.37	11.64	9.27	0.793
191	5.3	10.36	11.64	9.27	0.793
197	5.3	10.37	11.64	9.26	0.792
198	5.3	10.37	11.64	9.27	0.793



