



**EMPREGO DE CO-LINGOTAGEM PARA FABRICAÇÃO DE
ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS**

*CLAUER TRENCH DE FREITAS, THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS,
ERBERTO FRANCISCO GENTILE e FRANCISCO AMBROZIO FILHO*

PUBLICAÇÃO IEA N.º 261
Fevereiro — 1972

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"
SAO PAULO — BRASIL

**EMPRÉGO DE CO-LINGOTAGEM PARA FABRICAÇÃO DE
ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS***

**Clauer Trench de Freitas, Tharcisio D. de Souza Santos
Erberto Francisco Gentile, Francisco Ambrozio Filho**

**Divisão de Metalurgia Nuclear
Instituto de Energia Atômica
São Paulo - Brasil**

**Publicação IEA Nº 261
Fevereiro - 1972**

* Separata de "METALURGIA - REVISTA DA ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE METAIS", vol. 28, nº 171, Fevereiro, p.121-128, 1972.

EMPRÊGO DE CO-LINGOTAGEM PARA FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS ⁽¹⁾

CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽²⁾
THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS ⁽³⁾
ERBERTO FRANCISCO GENTILE ⁽⁴⁾
FRANCISCO AMBROZIO FILHO ⁽⁵⁾

R E S U M O

São apresentados resultados obtidos na fabricação, por co-lingotagem, de elementos combustíveis planos, dotados de núcleos constituídos por dispersões de óxidos de urânio em alumínio. Utilizaram-se dispersões contendo de 20 a 55% em peso de fase cerâmica. Descreve-se a caracterização dos pós cerâmicos mediante determinações de densidade por picnômetro, medida de superfície específica, aplicando uma modificação do método BET, e espectrometria de raios-X. Foram estudadas variáveis de processo tais como, pressões de compactação das dispersões, temperaturas de vazamento do alumínio usado no revestimento e reduções na laminação, permitindo identificar a origem de defeitos encontrados nos elementos combustíveis acabados. Ênfase foi dada a ensaios visando determinar reatividade dos componentes do núcleo e o grau de seu caldeamento com o revestimento de alumínio. Obtiveram-se placas combustíveis atendendo às especificações de uso internacional corrente.

1. INTRODUÇÃO

Elementos combustíveis planos, com núcleos constituídos por ligas e dispersões contendo urânio, vêm sendo produzidos desde 1963 no Instituto de Energia Atômica (IEA) ^(1, 2). Dois processos de fabricação têm sido utilizados: co-lingotagem e co-laminação do material de revestimento com o núcleo; o último tem encontrado aplicação freqüente na tecnologia nuclear ⁽³⁻⁵⁾, destacando-se historicamente seu emprêgo na fabricação de combustível para o primeiro reator a ser exposto ao público em geral, na Conferência Internacional de Genebra, em 1955 ⁽²⁾.

A co-lingotagem, conhecida em inglês como "cast-cladding", foi empregada para dispersões U_3O_8 -Al, com inteiro sucesso no Laboratório Nacional de Argonne (Illinois, EUA), durante mais de três anos. Bergua et al. descrevem-na em detalhes, ressaltando ser ela muito mais econômica

que o processo de co-laminação ⁽¹⁰⁾, quando aplicada ao desenvolvimento de elementos combustíveis para reatores de pesquisas, de baixa potência. Essencialmente, o método usado em Argonne consiste no vazamento de alumínio, a aproximadamente 800°C, em uma lingoteira desmontável de aço inoxidável, cujas paredes laterais são atravessadas por parafusos do mesmo material, destinados a centrar e suportar um briquete constituído por dispersão U_3O_8 -Al. Conforme será adiante exposto, tornaram-se necessárias várias modificações no processo original de Argonne, a fim de adaptá-lo às diferentes condições encontradas no IEA, provenientes sobretudo de algumas peculiaridades apresentadas pelas dispersões utilizadas.

2. INTERESSE DA APLICAÇÃO DE CO-LINGOTAGEM

O processo de co-laminação tem sido amplamente utilizado em bases comerciais, nos Estados Unidos; o HFIR ⁽¹¹⁾, um dos mais avançados reatores americanos, opera com placas combustíveis produzidas por tal método. No entanto, a co-lingotagem apresenta alguns característicos bastante atrativos, adiante enumerados; alguns deles são especialmente importantes, uma vez consideradas certas particularidades do desenvolvimento tecnológico brasileiro.

1 — Há grande facilidade em se variar a composição do material de revestimento, ajustando-a aos característicos de conformação a quente, do material do núcleo ⁽¹²⁾. Bergua et al. empregaram principalmente uma liga constituída por

(1) Contribuição Técnica n.º 977. Apresentada ao XXVI Congresso Anual da ABM: Rio de Janeiro, GB — junho/julho de 1971.

(2) Membro da ABM; Engenheiro Ceramista e Nuclear, Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

(3) Membro da ABM; Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica; Professor de Metalurgia dos Metais Não-Ferrosos e Chefe do Departamento de Engenharia Metalúrgica da Escola Politécnica da Universidade de São Paulo, SP.

(4) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista e Nuclear, Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

(5) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista, Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

98% de alumínio, 1% de ferro e 1% de níquel, quando o núcleo continha 55% U_3O_8 -Al (*); na utilização de 80% U_3O_8 -20% Al, foi necessário tornar menos plástica a liga por meio de adições de até 10% de silício. O uso de ligas alumínio-níquel provocou sérias dificuldades na fabricação das placas combustíveis para o reator de baixa potência, de Argonne, quando se tentou lançar mão das técnicas convencionais de co-laminação; o problema só pôde ser resolvido mediante um delicado processo de prensagem à quente (13, 14). Note-se ainda que não é fácil, nas atuais condições do mercado brasileiro, adquirir laminados de ligas especiais de Al, de pureza nuclear; são eles necessários para aplicação do processo de co-laminação, sobretudo quando se deseja melhorar a resistência à corrosão do revestimento, diminuindo ao mesmo tempo sua disparidade de trabalhabilidade à quente, relativa à do núcleo.

2 — Mesmo em países tão tecnologicamente avançados como os Estados Unidos, a co-lingotagem possibilita um melhor controle de qualidade do alumínio constituinte do revestimento (15). O conjunto de molduras e placas de revestimento empregados na co-laminação é, usualmente, preparado a partir de laminados adquiridos no comércio; ainda que se adquira o melhor alumínio disponível no mercado, não há qualquer garantia que o mesmo seja imune ao aparecimento de bôlhas, quando aquecido a 500°C (16). Observe-se que no ensaio de empolamento (16), destinado a verificar a qualidade de caldeamento entre os componentes de elementos combustíveis co-laminados, verificou-se a ocorrência de bôlhas não só nas zonas de ligação entre revestimento e núcleo, como também no interior do volume correspondente ao alumínio obtido comercialmente (15), tal é atribuível a deficiências no controle de qualidade da produção do mencionado metal.

3 — O método de co-laminação, aplicado em escala industrial, demanda o emprêgo de matrizes para estampagem de molduras; torna-se também imprescindível uma cuidadosa ajustagem do núcleo na moldura (17), o que é bastante trabalhoso, devido a dimensões não sistemáticas, provenientes das operações de compactação e pré-sinterização, pelas quais passa obrigatoriamente a dispersão. Requer-se ainda que os laminados utilizados tenham espessuras às vezes bastante afastadas daquelas usualmente disponíveis nos fornecedores comerciais. A co-lingotagem permite evitar tôdas essas dificuldades.

4 — Temperaturas da ordem de 500 a 600°C, necessárias na co-laminação, são capazes de provocar excessiva reação entre os componentes das dispersões usadas. Na co-lingotagem, pode-se desenvolver satisfatoriamente a laminação a partir

de 350°C. Tal fato é muito, importante quando se considera, por exemplo, o emprêgo de dispersões UO_2 -Al, as quais podem apresentar reatividade apreciável, acima de 500°C (18). Observe-se, ainda, que a operação de brazagem a temperaturas elevadas, descrita como importante, em algumas aplicações de co-laminação (19), torna-se desnecessária na co-lingotagem.

5 — Caldeamento entre núcleo e revestimento é desejável a fim de que seja bastante boa a transferência de calor do núcleo para o meio arrefecedor do combustível; a técnica usual de co-laminação nem sempre permite alcançar aquêlo objetivo. Na co-lingotagem, devido à excelente ligação inicial entre núcleo e revestimento de alumínio, fruto da contração do metal após vazamento, há melhores condições para que se desenvolva bom caldeamento, no decorrer da laminação.

6 — Por co-lingotagem, é possível o preparo de combustível com até 80% em peso de U_3O_8 , no núcleo (21). Murray (22) dá 30% em volume de fase cerâmica como sendo o limite de conformação à quente de dispersões preparadas por co-laminação; êsse valor corresponde a cerca de 50% em peso, quando se utiliza U_3O_8 (*). Cunningham (23) menciona 45% em volume (cerca de 73% em peso) como o limite superior de trabalhabilidade de dispersões U_3O_8 -Al. Capocchi et al. (24) conseguiram co-laminar placas com dispersões contendo 75% em peso de U_3O_8 , compactadas à baixas pressões (0,5 t.cm⁻²), tendo todavia obtido densidades de 74,5% D_t para os núcleos laminados (**), valor inferior aos correntemente especificados (25, 26), situados acima de 90% D_t . Tendo em vista tais referências, torna-se aparente que o limite de 80% em peso (cerca de 53% de volume) de U_3O_8 , atingido na co-lingotagem, é sensivelmente mais alto que os outros anteriormente citados.

Cumpre-nos mencionar algumas das possíveis desvantagens do processo de co-lingotagem. A mais importante está ligada ao fato de existirem apenas limitadas informações referentes ao comportamento, sob irradiação, de elementos co-lingotados (27). Não se fizeram estudos referentes aos característicos de transferência de calor de tais combustíveis, embora recentemente se tenham iniciado esforços em tal sentido, no IEA. Com relação à liga de 98% Al, 1% Ni e 1% Fe, bastante

(*) Quando o metal utilizado na dispersão é o alumínio e admitindo-se que o núcleo laminado apresente 5% de porosidade, a relação de percentagem em volume V_c , da fase cerâmica de densidade ρ_c , com sua percentagem em peso P_c , pode ser determinada pela fórmula:

$$V_c = \frac{P_c}{\int_0^{P_c} \left(\frac{1}{V_c} - 1 \right) + 1}$$

(**) D_t = densidade teórica da dispersão.

(*) Tôdas as composições percentuais são dadas em peso, no desenvolvimento dêste trabalho.

empregada nas co-lingotagens executadas em Argonne, apresenta excelente resistência à corrosão pela água, a 100°C (27); todavia as temperaturas mais altas, encontradas em reatores de alto fluxo, possivelmente requerem ligas mais resistentes.

3. COMPOSTOS CERÂMICOS E INTERMETÁLICOS CONSIDERADOS POTENCIALMENTE UTILIZÁVEIS

Devido às temperaturas de fabricação relativamente baixas, o método da co-lingotagem permite maior latitude na escolha de componentes que, com o alumínio, têm bom potencial de aplicação em reatores. Tal se deve à inexistência ou diminuição da reatividade entre os constituintes das dispersões, atribuível às menores temperaturas requeridas. Os critérios de seleção baseiam-se, principalmente, nos seguintes fatores: absorção de neutrons; comportamento sob irradiação; concentração de elemento fissil (em geral U-235) no núcleo; compatibilidade química com o alumínio e o meio arrefecedor; característicos metalúrgicos das dispersões, destacando-se a ductilidade; e condutividade térmica.

A concentração de urânio na dispersão assume particular importância quando se tem de trabalhar com material de baixo enriquecimento em U-235 (28). Assim é, que foi necessário empregar urânio enriquecido à 20%, na preparação dos elementos combustíveis para o reator brasileiro Argonauta (6). Sob tal ponto de vista, torna-se interessante tentar utilizar compostos com grande concentração em peso de urânio, em dispersões com a menor quantidade possível de fase metálica; além disso, pela mesma razão, convém que a dispersão atinja a maior densidade compatível com o requisito de apresentar boa retenção de gases de fissão (29). Nos modernos reatores que empregam U₃O₈-Al, as densidades dos núcleos combustíveis estão entre 95 e 97% D_c após a laminação (25, 30).

A figura 1 mostra a concentração de U-235 em função do volume de fase cerâmica ou intermetálica, para densidades de núcleo iguais a 95% D_c. Foi tomado como limite prático L₁, de conformação a quente, o valor de 53% em volume, correspondente ao máximo de 80% em peso de U₃O₈ nas dispersões com Al, alcançado por Argonne mediante emprêgo de co-lingotagem. Indica-se também o limite L₂ igual a 45%, estabelecido por Cunningham e já mencionado anteriormente; não se encontrou referência alguma que registrasse caso de se ter ultrapassado L₂, pela utilização de co-laminação. O "intervalo de interesse" indica na figura o campo de variação de concentrações de U-235, em alguns elementos combustíveis americanos; R₁, R₂, R₃, R₄, R₅ correspondem respectivamente às concentrações nos combustíveis dos reatores Argonauta (54,36% U₃O₈), Pôrto Rico (de pesquisas com 64% U₃O₈), MTR, HFIR (26%

U₃O₈) e ATR (34,6% U₃O₈). O HFIR e o ATR são reatores de alto fluxo, podendo atingir mais de 10¹⁵ neutrons cm⁻².s⁻¹; utilizam urânio altamente enriquecido.

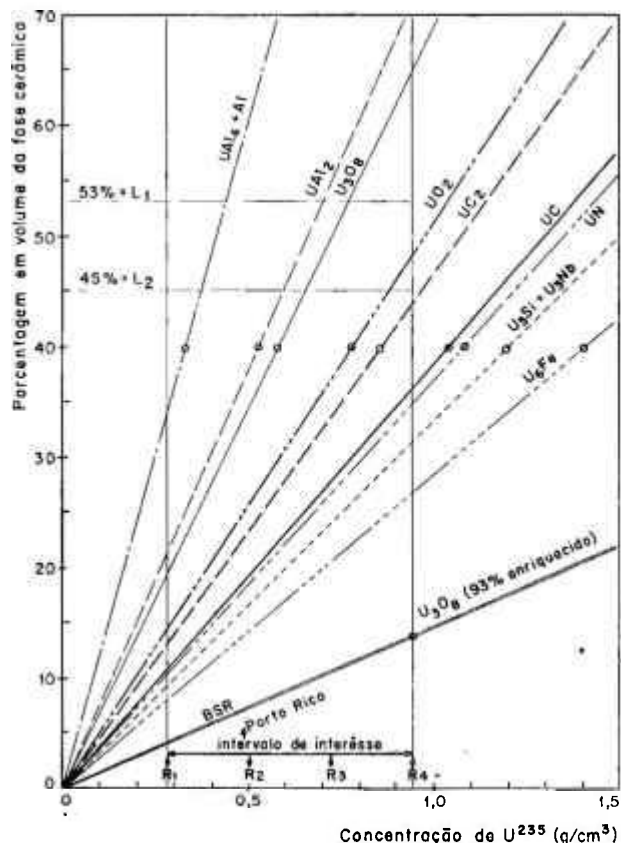


Fig. 1 — Porcentagem em volume de fase cerâmica ou intermetálica em função da concentração de U-235 no núcleo de elementos combustíveis. L₁ é o limite máximo para incorporação de fase cerâmica em núcleos combustíveis processados por laminação; foi alcançado no Laboratório Nacional de Argonne (EUA), empregando o método de co-lingotagem. O intervalo de interesse indica algumas das concentrações de U-235 atualmente em uso; R₁ corresponde ao reator brasileiro Argonauta e R₂ ao reator americano de alto fluxo ATR.

As retas e outros elementos constantes da figura 1 foram obtidos a partir de dados apresentados pelo Laboratório Nacional de Oak Ridge (Tennessee, EUA) (30-32).

4. MATERIAIS UTILIZADOS

Nas pesquisas descritas neste trabalho, foram usadas exclusivamente dispersões de U₃O₈ ou UO₂ em alumínio, sobretudo devido ao fato de já terem sido empregados, freqüentemente, como a técnica de co-laminação.

Relativamente às dispersões U₃O₈-Al, aquelas contendo UO₂-Al apresentam algumas vantagens importantes. Para mesma concentração de urânio têm-se:

1 — A fração do volume total ocupada pela fase cerâmica é menor, o que melhora a plasticidade da dispersão e também a sua ligação com o revestimento; diminui-se ainda a possibilidade de reação do UO_2 com o Al, em condições de ciclagem térmica, face à menor área de contacto entre aqueles materiais.

2 — A condutividade térmica é maior, devido ao valor mais alto que esta propriedade alcança para o UO_2 ⁽³⁴⁾ e pelo fato de haver mais alumínio na dispersão.

3 — Conforme se verifica na figura 1, para uma certa concentração de U-235 no núcleo, a percentagem em volume do UO_2 pode ser bem menor que aquela correspondente a U_3O_8 . Assim, para 0,94 g/cm³ de U-235, ainda é possível a conformação a quente da dispersão com 48% de UO_2 (menos que o limite L_1); tal se torna impraticável com os 66% em volume, requeridos para U_3O_8 .

4 — As partículas de UO_2 apresentam resistência maior à fragmentação, durante a laminação; êsse fato, verificado no IEA por meio de análise metalográfica, tem grande relevância, pois diminui-se assim o indesejável efeito de alinhamento ("stringering") ⁽³⁵⁾ da fase cerâmica. O alinhamento aumenta a superfície específica do material cerâmico, podendo acelerar eventuais reações entre os componentes das dispersões; além disso cria corredores pelos quais facilmente penetra o fluido arrefecedor (em geral constituído por água), no caso de aparecerem falhas no revestimento do combustível.

4. ESPECIFICAÇÕES E ENSAIOS

Os vários tipos de U_3O_8 e UO_2 empregados neste trabalho satisfazem às especificações para reatores de baixa potência, que demandam densidades de pó, determinadas por picnômetro, superiores a 7,4 g/cm³ ⁽³⁶⁾. Todavia, nem todos os óxidos usados satisfizeram às especificações mais rigorosas, relativas a reatores de alto fluxo ⁽³⁷⁾; neste caso, requer-se densidade mínima de 8,25 g/cm³.

A determinação de densidade de pó por picnômetro foi feita de acôrdo com técnica empregada no Laboratório de Oak Ridge ⁽³⁸⁾. Essencialmente, o método consiste em se carregar a vácuo, com mercúrio, um picnômetro de 20 ml, previamente cheio com UO_2 em pó, com granulometria compreendida entre -100 + 150 malhas por polegada. No caso de U_3O_8 , o processo é ligeiramente modificado, impregnando-se o material a vácuo, com tolueno.

Segundo Taylor et al. ⁽³⁵⁾, a superfície específica não dá uma indicação que permite estabelecer correlação razoável com qualidade do UO_2 , com relação a seu comportamento durante a lami-

nação. Nesta operação, realmente, o mais importante é que o material apresente grande resistência à fragmentação, a fim de evitar o alinhamento da fase cerâmica. As partículas devem, pois, ter boa resistência mecânica, a qual parece se correlacionar melhor com densidade, obtida por picnômetro; talvez apenas para o caso de tipos de pós com tamanhos de partículas e poros aproximadamente iguais, seja possível estabelecer correlação aceitável entre superfície específica e resistência à fragmentação. Evidentemente, não convém trabalhar com pós de superfície específica muito alta, com o metal da dispersão; especifica-se, assim, o limite de 0,05 m²/g para U_3O_8 ⁽⁴⁰⁾, mencionando-se 0,04 m²/g para UO_2 ⁽³⁹⁾.

Foi possível obter U_3O_8 com superfície específica de 0,048 m²/g e densidade de 8,3 g/cm³, por sinterização de pastilhas daquele óxido a 1400°C, por três horas; o material foi fragmentado em almofariz, tendo sido utilizada apenas a fração -150 + 325 malhas por polegada.

Obteve-se UO_2 com densidade dentro das especificações, superior a 10,1 g/cm³ ⁽⁴¹⁾, destruindo-se em almofariz pastilhas de densidades maiores que 10,2 g/cm³, sinterizadas em argônio, a 1400°C.

Para a determinação das superfícies específicas, emprega-se uma variante do método BET; efetuou-se adsorção gasosa usando nitrogênio a pressões parciais definidas, na temperatura do nitrogênio líquido.

As especificações para o reator ATR demandam que o U_3O_8 apresente no máximo 0,5% de UO_2 ⁽³⁷⁾; verificou-se que êsse limite não foi ultrapassado utilizando espectrometria de raio-X, com varredura de 1°/min.

No que se refere à densidade dos núcleos deformados, determinou-se por método desenvolvido no IEA ⁽⁴¹⁾; observa-se que os reatores americanos mais modernos, utilizando U_3O_8 -Al como combustível, apresentam densidades de núcleo variando entre 95% e 97% D_t ^(25, 26).

A homogeneidade dos núcleos foi verificada por radiografias. De acôrdo com as especificações para o reator HFIR ⁽⁴²⁾, em nenhuma área circular com 1,98 mm (5/64 polegadas) de diâmetro, a carga de combustível pode exceder a nominal por mais de 30%; além disso, a variação admissível para a concentração de urânio em uma secção longitudinal do combustível, com 1,98 mm de largura, é de $\pm 10\%$. Os requisitos de homogeneidade para as dispersões do reator ATR são ainda mais rígidos ⁽⁴³⁾.

Métodos especiais ⁽⁴⁴⁾ foram desenvolvidos em Oak Ridge para verificar se os elementos do HFIR e do ATR satisfaziam às especificações. No IEA recorreu-se à observação em fluoroscópio; a análise qualitativa sugere que a densidade de algumas das chapas é satisfatória, atendendo provavelmente às especificações do HFIR.

Para verificar a qualidade da fundição, no preparo de lingotes com núcleo de dispersão, usou-se gamagrafia. Esse método permitiu identificar defeitos com dimensões de até 2 mm.

Os ensaios necessários para verificar caldeamento de núcleo com revestimento são especialmente importantes. Neste trabalho usaram-se ensaios de empolamento ⁽⁴⁵⁾ e de dobramento. Este último consiste em dobrar, endireitar e dobrar novamente em direção oposta as placas combustíveis, inicialmente recozidas a 450°C, por 2 horas; o dobramento é feito em tórno de um tubo de aço, cujo raio guarda uma relação constante com a espessura do núcleo. Os resultados mostraram que é possível estabelecer boa correlação entre número de ciclos de dobramento correspondentes à ruptura da ligação núcleo-revestimento e a qualidade de caldeamento.

Muitos dos elementos combustíveis obtidos por co-lingotagem apresentaram excelente caldeamento, verificado pelos mencionados ensaios. É, pois, de se esperar que fôssem também plenamente aprovados em ensaios menos drásticos, como por exemplo o de ultrassom, adotado em Oak Ridge ⁽⁴⁶⁾.

A fim de determinar a reatividade dos componentes do núcleo, empregou-se um ensaio de ciclagem térmica, em que os elementos combustíveis passavam de água quente (84°C) para frio (30°C) em ciclos sucessivos, com duração de 11 minutos. Constatou-se metalograficamente que placas com núcleos de alta densidade e utilizando U_3O_8 ou UO_2 , satisfazendo as especificações anteriormente mencionadas, não apresentavam qualquer indicação de reatividade.

5. OPERAÇÕES DE CONDICIONAMENTO DAS DISPERSÕES E COMPACTAÇÃO

As operações de condicionamento e compactação das dispersões de U_3O_8 e UO_2 em alumínio executaram-se segundo técnicas já tradicionais no IEA ^(1, 2, 24).

Os pós de UO_2 ou U_3O_8 (-150 + 325 malhas por polegada) foram misturadas com Al em tambores plásticos de 1500 cm³, com 13 cm de diâmetro externo, girando por 24 h com velocidade de 84 cm/seg; adicionou-se à carga cerca de 200 g de cilindros de borracha, com 3 cm de altura e 1,5 cm de diâmetro. A compactação foi efetuada em matriz de aço, com cavidade de secção medindo 32 x 64 mm; as pressões variaram entre 1 e 5 t.cm⁻².

6. LINGOTAGEM

Procedeu-se a uma série de experiências, a diferentes temperaturas, com o intuito de deter-

minar as melhores condições para a fundição do revestimento de alumínio.

Constatou-se que para temperaturas altas de vazamento, acima de 800°C, o briquete constituente do núcleo podia se arrebentar, provavelmente devido à expansão térmica excessiva contra os parafusos de suporte. Determinou-se que lingotes satisfatórios podiam ser obtidos mediante vazamento do alumínio a 700°C. Bolsões de contração, que muitas vezes apareceram na parte inferior dos lingotes, foram eliminados pela colocação de peça de alumínio na base da lingoteira, proporcionando o desejável gradiente de temperaturas, no resfriamento. Satisfatória centragem do núcleo foi conseguida mediante a aplicação de duas plaquetas de alumínio, de 1 mm de espessura, nas faces laterais do briquete, sobre as quais se exercia a pressão dos parafusos de sustentação.

7. LAMINAÇÃO

Foram bastante variáveis as condições de laminação.

A primeira fase consistia em um pré-aquecimento por 40 minutos, a temperatura variando entre 400 e 600°C. Utilizaram-se reduções iniciais, por passe, de 2 a 8%, em fase intermediária; a redução máxima não ultrapassou 25%. Após cada passe, as placas voltavam ao forno colocado a 400-600°C. Foi feita sempre uma laminação final a frio, com reduções da ordem de 2 a 3%. Constatou-se que todas as chapas podiam suportar reduções por passe da ordem de 20%.

As placas mais facilmente lamináveis, no que se refere à homogeneidade de núcleo, foram aquelas nas quais a pressão de compactação dos núcleos havia sido baixa; todavia, nesses casos, a densidade final do núcleo ficou abaixo de 90% D_c . Atribuiu-se o rompimento do núcleo, verificado em algumas placas de alto teor de alumínio, à grande diferença de característicos de conformação a quente apresentados pelas dispersões e ligas de alumínio utilizadas.

Cumprir destacar os excelentes resultados obtidos na laminação de algumas placas contendo UO_2 . Uma delas, com 30% de UO_2 , não apresentou qualquer reação com o alumínio da dispersão, mesmo após ter sido ciclada mais de 1000 vezes entre 30 e 83°C (fig. 2).

Demonstrou-se, também, que elutrição em água, do U_3O_8 , permite melhor separar partículas com menos de 44 μ , muitas vezes formadas por aglomeração, após peneiramento. A figura 3 mostra secção transversal de núcleo com 25% de U_3O_8 elutriado. Secções longitudinais mostram que o alinhamento da fase cerâmica, embora presente, não é excessivo quando comparado com o registrado na literatura.

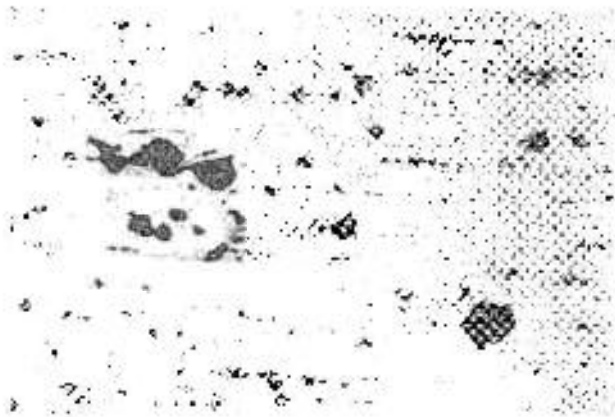


Fig. 2 — Seção longitudinal de núcleo de combustível constituído por 30% de UO_2 em Al. O elemento combustível foi ciclado 1093 vezes, entre temperaturas de 30 e 85°C. Não há qualquer evidência de reação entre UO_2 e a matriz de alumínio. Aumento: 100 X.



Fig. 3 — Seção transversal de placa combustível utilizando dispersão com 25% de U_2O_3 em alumínio. O U_2O_3 havia sido elutriado em água, a fim de separar partículas menores, existente em dispersões no qual o U_2O_3 não foi elutriado. Aumento: 80 X.

Várias placas, com núcleos compactados a 4 ou 5 t.cm⁻² e contendo de 25 a 45% da fase cerâmica (U_2O_3 ou UO_2) apresentaram, após laminação, densidades de núcleo superiores a 95%; satisfaziam também os requisitos de homogeneidade, anteriormente mencionados. Conseguiram-se, assim, elementos combustíveis com os características daqueles presentemente utilizados no exterior.

8. CONCLUSÕES

1 — Pelo método da co-lingotagem, obtêm-se placas combustíveis com concentrações da fase cerâmica que podem chegar até 2,80% em peso.

2 — Os núcleos das placas, após a laminação, apresentam-se bastante densos, podendo atin-

gir mais de 95% da densidade teórica; ensaios de ciclagem térmica demonstram que seus componentes são quimicamente estáveis.

3 — A homogeneidade dos núcleos, analisada em radiografias, satisfaz aos requisitos correspondentes a reatores de alto fluxo.

4 — A qualidade do caldeamento, entre núcleo do elemento combustível e seu revestimento revelou-se excelente, quando foram empregados tanto o ensaio de empolamento como o de dobramento.

BIBLIOGRAFIA

1. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — "Development Studies for Argonaut Fuel Plates Fabrication". Transactions, Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors, São Paulo, 1963, v. 1, p. 279-297, AIEA, Viena, 1965.
2. SOUZA SANTOS, T. D.; BIDWELL, R. M.; HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — "Nota Preliminar sobre Propriedades e Estruturas de dispersões U_2O_3 -Al". ABM-Boi. Ass. Bras. Met., v. 20, n.º 84, p. 567-576, 1964.
3. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — "Development in Fuel Fabrication for Research Reactors in Brazil". Proceedings, Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, v. 10, p. 26-29, Organização das Nações Unidas, New York, 1965.
4. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — "Experimental Studies on the Fabrication of Thin Fuel Plates with U_2O_3 -Al cermets". Proceedings, Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, v. 10, p. 33-37, Organização das Nações Unidas, New York, 1965.
5. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — "Fabricação de Elementos Combustíveis para o Reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear". Metalurgia-Rev. Ass. Bras. Met., v. 21, n.º 90, p. 369-376, 1965.
6. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. — "Principais Características Metalúrgicas dos Elementos Combustíveis Produzidos para o Reator "Argonauta" do Instituto de Engenharia Nuclear". Metalurgia-Rev. Ass. Bras. Met., v. 21, n.º 97, p. 909-921, 1965.
7. CUNNINGHAM, J. E. e BOYLE, E. J. — "MTR — Type Fuel Elements". Proceedings, International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy (1955), v. 9, p. 203-207, Organização das Nações Unidas, New York, 1956.
8. SCHUMAR, J. F. — "Fabrication Techniques for Various Types of Fuel Elements". Nuclear Fuel Elements, p. 49. Reinhold Publishing Co., New York, 1959.
9. JOHNSON, J. R. — "Application of Cermets to Nuclear Devices". Cermets, p. 191. Reinhold Publishing Co., New York, 1960.
10. BERGUA, H.; FRIDDLE, R.; DIAZ, J. e BAIRD, J. — "Fabrication of the ISNSE Fuel Element for Low Power Research Reactors". Nuclear Fuel Elements, p. 186. Reinhold Publishing Co., New York, 1959.
11. MARTIN, M. M.; ERWIN, J. H. e LEITEN, C. F. — "Fabrication Development of the Involute-Shaped High Flux Isotope Reactor Fuel Elements". Research Reactor Fuel Element Conference, v. 1, p. 268-289, Oak Ridge National Laboratory, TID-7642, 1962.

12. Ref. (10), p. 189.
13. Ref. (10), p. 188.
14. Ref. (8), p. 51.
15. Ref. (10), p. 190.
16. CAPOCCHI, J. D. T.; CINTRA, S. H. L. e GENTILE, E. F. — “*Estudo experimental de fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleos de cermet*”. *Metallurgia-Rev. Ass. Bras. Met.* v. 24, n.º 124, p. 207, 1968.
17. HOBSON, D. O.; HEESTAND, R. L. e LEITTEN Jr., C. F. — “*Fabrication Development of U₃O₈-Aluminum Composite Fuel Plates for the Advanced Test Reactor*”. p. 16 e 17. Oak Ridge National Laboratory-ORNL-3644, 1964.
18. SOUZA SANTOS, T. D. — “*Combustíveis Cerâmicos e Grafita*”, p. 63. Curso desenvolvido pelo Prof. W. D. Wilkinson no Argonne National Laboratory, CNEN-1-EN, Rio de Janeiro, 1961.
19. BEAVER, R. J. et. al. — “*Uranium Oxide Dispersions. Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications*”, p. 143. Naval Reactors, Division of Reactor Development, USAEC, 1961.
20. Ref. (9), p. 20.
21. Ref. (10), p. 185.
22. MURRAY, P.; WILLIAMS, J. — “*Ceramic and Cermet Fuels*”. *Progress in Nuclear Energy — Metallurgy and Fuels — Series V*, n. 4, p. 520-542, Pergamon Press, 1961.
23. CUNNINGHAM, J. E. et. al. — “*Fuel Dispersions in Aluminum-base Elements for Research Reactors*”. *Fuel Elements Conference*, p. 271, v. 1, USAEC TID-7546, 1957.
24. Ref. (16), p. 202.
25. KUCERA, W. J.; LEITTEN, C. F. e BEAVER, R. J. — “*Specifications and Procedures Used in Manufacturing U₃O₈-Aluminum Dispersion Fuel Elements for Core 1 of the Puerto Rico Research Reactor*”, p. 21. Oak Ridge National Laboratory ORNL-3458, 1963.
26. Ref. (17), p. 47.
27. Ref. (10), p. 191.
28. Ref. (25), 13.
29. MANDIL, H. I. e SCOTT, R. G. — “*Uranium Dioxide and its Application to Nuclear Power Reactors: Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications*”, p. 19. Naval Reactors, Division of Reactor Development, USAEC, 1961.
30. Ref. (23), p. 270-272.
31. Ref. (25), p. 2-50.
32. Ref. (11), p. 285.
33. Ref. (17), p. 1-48.
34. KINGERY, W. D.; ROSS, A. M. e BELLE, J. — “*Thermal Conductivity. Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications*”, p. 187. Naval Reactors, Division of Reactor Development, USAEC, 1961.
35. Ref. (29), p. 20.
36. Ref. (25), p. 18.
37. BEAVER, R. J.; ADAMSON, G. M. e PATRIARCA, P. — “*Procedures for Fabricating Aluminum-Base ATR Fuel Elements*”, p. 11. Oak Ridge National Laboratory ORNL-3632, 1964.
38. TAYLOR, J. A.; CHERUBINI, H. J.; ROBBINS, M. J. e HAYDON, P. M. — “*Characterization of Spheroidal UO₂ Particles and Studies of Fabrication Variables for Core B Fuel Plates of the Enrico Fermi Fast Breeder Reactor*”. p. 13. Oak Ridge National Laboratory ORNL-3645, 1964.
39. Ref. (38), p. 10.
40. Ref. (38), p. 27.
41. Ref. (16), p. 209.
42. MC CLUNG, R. W. — “*Development of Nondestructive Testing Techniques for the High Flux Isotope Reactor Fuel Element*”. p. 10. Oak Ridge National Laboratory ORNL-3780, 1965.
43. MC CLUNG, R. W. — “*Nondestructive Testing of the High-Flux Isotope Reactor and Advanced Test Reactor Fuel Elements*”. p. 343. *Research Reactor Fuel Element Conference*, v. 1. USAEC, 1962.
44. Ref. (43), p. 337-359.
45. Ref. (16), p. 207.
46. Ref. (43), p. 338.

DISCUSSÃO

HERVÁSIO GUIMARÃES ⁽¹⁾ — Desejo fazer duas perguntas. Uma se refere à incorporação de “venenos” em elementos combustíveis para reatores de alto fluxo. Gostaria de saber se foram estudados processos destinados a possibilitar tais adições.

Em segundo lugar, como se comparam elementos combustíveis feitos com núcleos constituídos por ligas alumínio-urânio e aqueles que utilizam dispersões?

CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽²⁾ — No referente a adições, fizemos algumas experiências de incorporação de metais e óxidos nas dispersões de U₃O₈-Al. Chumbo, zinco e alumina foram utilizados, tendo sido pós desses materiais misturados mecânicamente às dispersões, as quais eram em seguida compactadas em matrizes de aço. Essas experiências preliminares conduziram ao desenvolvimento de uma tecnologia aceitável, para a adição de venenos às placas combustíveis.

No reator americano ATR de alto fluxo, de tipo dos mais avançados, utiliza-se o método da mistura mecânica de B₄C à dispersão de U₃O₈-Al, seguida de compactação, a fim de obter o núcleo combustível contendo um veneno queimável. Creemos que placas semelhantes às do ATR poderiam ser produzidas mediante os processos estudados no Instituto de Energia Atômica.

Quanto à segunda pergunta, sobre comparação entre elementos combustíveis utilizando dispersões e aqueles que empregam núcleos de liga alumínio-urânio, solicito ao co-autor deste trabalho, Prof. Souza Santos, que a responda.

THARCISIO D. SOUZA SANTOS ⁽³⁾ — Muito interessante a pergunta. Estamos preocupados principalmente na ênfase do aperfeiçoamento da tecnologia de fabricação de elementos combustíveis, tanto pela tradicional técnica de moldura, como pela técnica de co-ligotagem.

(1) Presidente da Comissão Nacional de Energia Nuclear; Rio de Janeiro, GB.

(2) Co-autor da CT.

(3) Co-autor da CT.

Deve-se considerar a circunstância de que as ligas de alumínio-urânio, embora tenham comportamento excelente como material combustível, apresentam uma limitação importante, no referente ao máximo teor de urânio admissível na liga, compatível com os necessários processos de transformação mecânica. Quando se utiliza urânio altamente enriquecido, o problema se torna menos grave; em tal caso, à custa de enriquecimentos de 93%, pode-se empregar ligas com teores de urânio não superiores a 28%, talvez 31% no máximo. Nessa situação as ligas de Al-U podem apresentar vantagens sobre as dispersões.

Tornando-se necessário usar urânio enriquecido com um máximo de 20% do isótopo U-235, o emprego de ligas de U-Al apresenta uma dificuldade séria, pois limita consideravelmente a potência específica do elemento combustível. Em tais circunstâncias, as dispersões passam a apresentar grande interesse. Conseguimos dispersões com até 75% em peso de U_3O_8 , ou cerca de 64% de urânio. Pode-se pois resolver dessa forma o problema de limitação de potência específica, inerente à utilização de ligas U-Al com baixo enriquecimento.

HERVÁSIO GUIMARÃES — Desejo fazer breve observação no referente à concentração de urânio enriquecido, que não diz respeito à pergunta anterior. Quando se estuda a disponibilidade de urânio enriquecido, verifica-se que para um país capaz de produzir urânio enriquecido a 20%, não há grande dificuldade em aumentar o enriquecimento para 93%. O difícil é passar da faixa de 1 a 3% para 20% de enriquecimento.

T. D. SOUZA SANTOS — Na exposição do trabalho há um aspecto a respeito do qual vale a pena apresentar mais explicações. Refere-se às diferenças de comportamento dos elementos combustíveis, verificadas através de ensaios desenvolvidos por nós.* Executamos ensaios de dobramento e de ciclagem térmica. Espero que o Eng. Freitas possa comentar aquelas diferenças, para elementos obtidos por co-lingotagem e co-laminação.

C. T. FREITAS — Os elementos produzidos por co-lingotagem resistiram a um maior número de ciclos de dobramento, relativamente a combustíveis fabricados por co-laminação. Essa diferença de comportamento era mais acentuada para placas previamente submetidas a ensaio de ciclagem térmica; algumas delas, feitas por co-laminação, romperam-se no primeiro ciclo de dobramento, o que não se deu com nenhuma daquelas fabricadas por co-lingotagem. Entretanto, cumpre avaliar tais resultados com precaução. Com efeito, as dispersões utilizadas nos núcleos dos dois tipos de elementos tinham características diversas. No entanto pode-se concluir com segurança que, após ciclagem térmica, as placas co-lingotadas apresentavam melhor caldeamento que os elementos co-laminados, até esta época produzidos no Instituto de Energia Atômica de São Paulo. Com os dados presentemente disponíveis, seria todavia prematuro afirmar a superioridade dos combustíveis co-lingotados sobre os co-laminados, pois sobre os primeiros não há registro de ensaios de irradiação, essenciais para uma adequada caracterização de qualidade daqueles elementos.

H. GUIMARÃES — Considero como algo esplêndido este Congresso, para nosso setor de tecnologia nuclear, tendo em vista a qualidade dos trabalhos apresentados. Já atingimos posição bastante boa na área de Metalurgia, apesar do que dizem alguns. Vejo com prazer que, neste campo, o assunto é tratado de modo a constituir-se para nós em verdadeira glória. Desejo também que Congressos como este continuem a se repetir com frequência, a fim de se mostrar ao País o que se está fazendo neste setor.

WALTER ARNO MANNHEIMER (4) — O processo de fundição à vácuo poderia ter sido usado para a obtenção de lingotes sem defeitos?

C. T. FREITAS — Tal tipo de fundição foi realmente considerado. Todavia, o simples expediente de colocar um suporte metálico aquecido sob a massa de alumínio fundido, foi suficiente para resolver as dificuldades encontradas inicialmente; pôde-se, assim, eliminar o aparecimento de bolsões nos lingotes.

W. A. MANNHEIMER — Os elementos combustíveis produzidos são experimentais? Têm dimensões menores que aquelas encontradas em elementos atualmente empregados em reatores de pesquisa?

C. T. FREITAS — Não. As dimensões dos elementos fabricados são aquelas usualmente encontradas em reatores de pesquisa.

JORGE E. KITTL (5) — Desejaria saber qual o rendimento do processo de fabricação de elementos combustíveis por co-lingotagem. Seria da ordem de 90%?

T. D. SOUZA SANTOS — Conforme mostrou o expositor, fizemos extensas investigações sistemáticas para verificar defeitos de co-lingotagem, as quais começaram há aproximadamente sete anos. Recentemente, tais estudos passaram a abranger aproximadamente uma centena de placas fabricadas, demonstrando que, efetivamente, se pode localizar e controlar quaisquer defeitos. Nesta fase dos trabalhos produzimos cerca de sessenta placas, algumas apresentando defeitos que já conhecíamos, mas a maioria era constituída por chapas perfeitas. Não temos estudos estatísticos recentes sobre o rendimento do processo, mas julgamos dispôr de meios para alcançar menos de 10% de perdas na produção de placas.

PAULO GOMES DE PAULA LEITE (6) — Desejo fazer uma pergunta relativa à parte de descontinuidade do núcleo do elemento combustível. Existem normas que sirvam de base para aceitação ou rejeição de placas combustíveis apresentando descontinuidades?

C. T. FREITAS — Há um trabalho do Laboratório Nacional de Oak Ridge (EUA) que apresenta tais normas.

P. G. PAULA LEITE — Têm sido tais normas utilizadas com frequência, no exterior, para controle de qualidade de elementos combustíveis?

C. T. FREITAS — Não estou informado se a aplicação daquelas normas se generalizou no exterior. Todavia, ela foi julgada adequada para aplicação no Laboratório Nacional de Oak Ridge, uma das instituições americanas de maior experiência na fabricação de elementos combustíveis tipo placa.

P. G. PAULA LEITE — Foi dito que havia descontinuidade em parte onde não se encontrava dispersão. Correspondem elas a vazios?

C. T. FREITAS — Tais descontinuidades não se apresentam como vazios. Correspondem elas a interrupções do núcleo, preenchidas por alumínio.

(4) Membro da ABM; Engenheiro Químico e Doutor em Metalurgia; Chefe do Departamento de Engenharia Metalúrgica; COPPE-UFRJ; Rio de Janeiro, GB.

(5) Engenheiro Químico e Doutor; Chefe do Departamento de Metalurgia Geral da Comisión Nacional de Energia Atômica Argentina.

(6) Membro da ABM e na Presidência da sessão. Engenheiro Civil; Professor na Escola de Engenharia da UFRJ e Assessor do Ministro de Minas e Energia; Rio de Janeiro, GB.

(*) *Um Ensaio de Alternância Térmica para Placas Contendo Dispersões* — MET., vol. 26, n.º 150, mai. 1970, p. 417.

ABSTRACT

Results obtained in the cast cladding fabrication of plate-type fuel plates are presented; the plates have an Al-U₃O₈ dispersion core. Dispersions containing from 20 to 50 w/o of the ceramic phase were used. It is described the ceramic powders characterization developed by picnometer density determinations, surface area measurements using a modified BET method and X-ray spectrometry. Process variables as dispersions compacting pressure, casting temperatures of the aluminum cladding and rolling reductions were studied; in this way it was possible to identify the origin of defects found in the finished fuel elements. Emphasis was given to tests for the determination of the fuel core components and their degree of bonding with the aluminum cladding. Fuel plates satisfying the current international specifications were obtained.

RÉSUMÉ

On présente les résultats obtenus pour la fabrication par co-lingotage d'éléments combustibles plans dotés de noyaux constitués par des dispersions d'oxydes d'uranium dans l'aluminium. Nous utilisons des dispersions contenant 20 à 55% en poids pour la partie céramique. Nous déterminons les caractéristiques des poudres de céramique au moyen de la détermination de densité par picnométrie, mesure de surface spécifique par la méthode B.E.T. modifiée, et par spectrométries aux rayons X. Furent également étudiés les différents procédés tels que: pressions de compression des dispersions, température d'étanchéité de l'aluminium utilisé pour le revêtement et réduction au laminage, permettant d'identifier l'origine des défauts rencontrés dans les éléments combustibles achevés. Enfin furent effectués les essais qui visaient la détermination de la réactivité des composants des noyaux et le taux de son mélange avec le revêtement d'aluminium. Nous avons obtenu des plaques combustibles qui respectent les spécifications internationales courantes.

RESUMEN

Son presentados los resultados obtenidos en la fabricación, por colingotaje, de elementos combustibles planos, dotados de nucleos constituidos por dispersiones de óxido de uranio en aluminio. Utilizaronse dispersiones conteniendo de 20 a 55% en peso de fase cerámica. Se describe la caracterización de los polvos cerámicos mediante determinaciones de densidad por picnómetro, medida de superficie específica, aplicando una modificación del método BET y espectrometría de rayos-X. Fueron estudiados variables de proceso tales como, presiones de compactación de las dispersiones, temperaturas de derrame del aluminio usado en el revestimiento y reducciones en la laminación, permitiendo identificar el origen de defectos encontrados en los elementos combustibles acabados. Fue dado énfases a los ensayos visando determinar reactividad de los componentes del núcleo y el grado de su caldeoamiento con el revestimiento de aluminio. Obtuvieronse placas combustibles atendiendo a las especificaciones de uso internacional corriente.