

**ESTUDO EXPERIMENTAL DE FABRICAÇÃO DE ELEMEN-
TOS COMBUSTÍVEIS PLANOS CONTENDO NÚCLEOS DE
"CERMETS"**

*JOSÉ DEODORO TRANI CAPOCCHI, SEBASTIÃO HERMANO LEITE
CINTRA, ERBERTO FRANCISCO GENTILE*



PUBLICAÇÃO IEA N.º 163
Junho — 1968

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

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Uriel da Costa Ribeiro

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof.Dr. Luis Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof.Dr. José Moura Gonçalves	}	pela USP
Prof.Dr. José Augusto Martins		
Prof.Dr. Rui Ribeiro Franco	}	pela CNEN
Prof.Dr. Theodoreto H.I. de Arruda Souto		

Divisões Didático-Científicas

Divisão de Física Nuclear -

Chefe: Prof.Dr. Marcello D.S. Santos

Divisão de Radioquímica -

Chefe: Prof.Dr. Fausto Walter de Lima

Divisão de Radiobiologia -

Chefe: Prof.Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni

Divisão de Metalurgia Nuclear -

Chefe: Prof.Dr. Tharcísio D.S. Santos

Divisão de Engenharia Química -

Chefe: Lic. Alcídio Abrão

Divisão de Engenharia Nuclear -

Chefe: Engº Pedro Bento de Camargo

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores -

Chefe: Engº Azor Camargo Penteado Filho

Divisão de Física de Reatores -

Chefe: Prof. Paulo Saraiva de Toledo

Divisão de Ensino e Formação -

Chefe: Prof.Dr. Rui Ribeiro Franco

ESTUDO EXPERIMENTAL DE FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS

PLANOS CONTENDO NÚCLEOS DE "CERMETS"

José Deodoro Trani Capocchi
Sebastião Hermano Leite Cintra
Erberto Francisco Gentile

RESUMEN

Continuando con los trabajos referentes a la fabricación de elementos combustibles, dotados de núcleos constituido por "cermet" totalmente revestido por aleación de aluminio, presentan los autores los resultados obtenidos en la fabricación de placas conteniendo núcleos ricos en la fase cerámica (55%, 60%, 65%, 70% e 75% de $U_{38}O$).

Los resultados, apesar de referirse a placas relativamente espesas (2,45 mm), son promisoros, pues se consiguió laminar perfectamente cuerpos de plasticidad relativamente baja, considerados de difícil o hasta imposible de ser trabajados, en las condiciones de las experiencias realizadas. Abrieronse entonces, nuevas perspectivas para la fabricación de placas con mayor concentración de uranio por unidad de volumen, con disminución progresiva del espesor total y de los espesores del núcleo y del revestimiento.

Son descriptos aspectos de la fase de producción de los "cermets" y de la producción de las placas. También se describen los ensayos de control de calidad efectuados.

Finalmente, se hace una comparación de las características metalúrgicas de diversas placas producidas en el desarrollo de varios proyectos de investigación, realizadas por la División de Metalurgia Nuclear del Instituto de Energia Atômica de São Paulo, en el período de 1963 a 1967.

RÉSUMÉ

En suite aux travaux relatifs à la fabrication des éléments combustibles, dotés des noyaux constitués par briquelette totalement revêtus par alliages d'aluminium, les auteurs présentent les résultats obtenus dans la fabrication des plaques contenant des noyaux riches

dans la phase céramique (55%, 60%, 65%, 70% et 75% de U_3O_8).

Malgré les résultats se rapportent aux plaques relativement épaisses (2,45 mm) , ils sont prometteurs, car on a obtenu laminé parfaitement des corps de plasticité relative ment basse, considérés de difficile ou même de impossible déformation, dans les conditions des expériences réalisées. On a ouvert, alors, des nouvelles perspectives par la fabrication des plaques, avec une plus grande concentration de l'uranium par unité de volume, avec une diminution progressive de l'épaisseur totale et des épaisseurs du noyau et de la gaine.

Ils sont décrits des aspects de l'étape de la production des briquettes (métallurgie des poudres) et de la production des plaques (laminage). On décrit, encore, les essais réalisés de contrôle de la qualité.

Au final, on fait une comparaison des caractéristiques métallurgique des plaques diverses produites dans le développement des plusieurs projets de pesquisition conclus par la Divisão de Metalurgia Nuclear du Instituto de Energia Atômica dans le période de 1963 à 1967.

ABSTRACT

As development of previous work on the fabrication of plate type fuel elements with cermet cores, using aluminum powder in the cermet and aluminum alloy as cladding material, the authors present the results obtained in the experimental studies carried out with cores with more than 55 w/o U_3O_8 and up to 75%.

The plates produced had a final thickness of 2,45 mm and were succesfully produced, in spite of the low plasticity of the core in the rolling operation.

The high U_3O_8 content in the core affords a correspondingly high U content per plate, which is of interest for the utilization in research reactors.

The fabrication procedure is described and presented the results obtained in the tests to evaluate their characteristics.

ESTUDO EXPERIMENTAL DE FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS PLANOS CÔNTENDO NÚCLEOS DE "CERMETS" (1)

JOSÉ DEODORO TRANI CAPOCCHI (2)
SEBASTIÃO HERMANO LEITE CINTRA (2)
ERBERTO FRANCISCO GENTILE (2)

RESUMO

Em prosseguimento aos trabalhos referentes à fabricação de elementos combustíveis, dotados de núcleos constituído por "cermet" totalmente revestido por liga de alumínio, apresentam os autores os resultados obtidos na fabricação de placas contendo núcleos ricos na fase cerâmica (55%, 60%, 65%, 70% e 75% de U_3O_8).

Os resultados, embora digam respeito a placas relativamente espessas (2,45 mm), são promissores, pois se conseguiu laminar perfeitamente corpos de plasticidade relativamente baixa, considerados de difícil ou até impossível trabalhabilidade, nas condições das experiências realizadas. Abriram-se, então, novas perspectivas para a fabricação de placas com maior concentração de urânio por unidade de volume, com diminuição progressiva da espessura total e das espessuras do núcleo e do revestimento.

São descritos aspectos da fase de produção dos "cermets" (Metalurgia do Pó) e da produção das placas (Laminação). Descrevem-se ainda os ensaios de controle de qualidade efetuados.

Finalmente, faz-se uma comparação dos característicos metalúrgicos de diversas placas produzidas no desenvolvimento de vários projetos de pesquisa, concluídos pela Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, no período de 1963 a 1967.

1. INTRODUÇÃO

O presente estudo experimental objetivou pesquisar a fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleos de "cermets" constituídos por dispersões de U_3O_8 e Al com teores da fase cerâmica superiores a 50% em massa.

Programas de pesquisa e mesmo de produção de elementos combustíveis deste tipo, foram desenvolvidos, anteriormente, pela Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, no período de 1963 a 1967. Diversos trabalhos apresentados em Congressos da Associação Brasileira de Metais ^{1, 2, 3, 4, 5 e 6} e da Agência Internacional de Energia Atômica ^{7, 8 e 9} relatam o desenvolvimento da tecnologia de fabricação de combustíveis planos.

Anteriormente, trabalhou-se com "cermets" de, no máximo, 54% da fase cerâmica, que corresponde a 27,7%, em volume. A pesquisa atual visou teores crescentes de U_3O_8 : 55%, 60%, 65%, 70% e 75% em massa, ou, respectivamente, 28,2%, 32,5%, 37,4% e 42,9% em volume (fig. 1).

Pesquisa bibliográfica revelara que outros grupos de pesquisadores preveram ou encontra-

ram dificuldades na obtenção de chapas perfeitas, à medida que o núcleo encerrava porcentagens maiores da fase cerâmica. Assim, Cunnigan, Beaver, Thurber e Waugh, estudando diversos tipos de núcleos para elementos combustíveis planos à base de alumínio e urânio ou seus compostos destinados a reatores de pesquisa, admitiram a existência de um "limite superior de trabalhabilidade" que seria cêrca de 72% (45% em volume) da fase cerâmica, no caso de dispersões de U_3O_8 e Al, com óxido enriquecido a 20% no isótopo U^{235} ¹⁰.

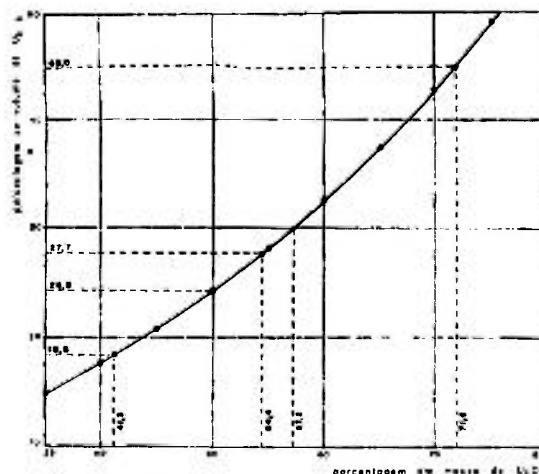


Fig. 1 — Correspondência entre a porcentagem em volume e a porcentagem em massa, da fase cerâmica, presente nos "cermets" de U_3O_8 e Al.

(1) Contribuição Técnica n.º 736. Apresentada ao XXII Congresso Anual da ABM; Vitória, ES; julho de 1967.

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

Outros pesquisadores, Murray e Williams, analisando de uma maneira geral, elementos combustíveis por dispersão, chegaram a uma generalização ao afirmarem, textualmente, o seguinte: "Núcleos contendo concentrações mais altas de óxido grosseiro produziram fraturas nas bordas ("edge cracks"), assim, 30% em volume de óxido parece representar, aproximadamente, o limite superior de concentração de uma fase frágil, quando se fabricam chapas tipo óxido/metal, por laminação a quente ¹¹".

Deve-se ressaltar que 30% em volume, em nosso caso, representam o início da série e também que 72% em massa foi ultrapassado como "limite superior de trabalhabilidade".

2. METALURGIA DO PÓ: PRODUÇÃO DOS "CERMETS"

Os "cermets" foram preparados com U₃O₈ natural obtido por calcinação de (NH₄)₂ U₂O₇ (diuanato de amônio de pureza nuclear processado no IEA), sob condições já descritas em outra Contribuição Técnica ¹².

O alumínio em pó empregado é de procedência francesa e apresenta análise constante da Tabela I ¹³.

TABELA I — Análise do pó de alumínio de procedência francesa, conforme certificado do Instituto de Pesquisas Tecnológicas

Impureza	Teor (%)
Fe	0,47
Si	0,10
Cu	0,03
Zn	—
Mg	0,09

O óxido empregado foi classificado na fração -325 malhas por polegada e o alumínio na fração -100 malhas por polegada. A relação de diâmetros máximos de partículas de óxido para as de alumínio é 0,3.

A homogeneização das misturas foi realizada em tambores plásticos com volume útil de 1500 cm³, 13 cm de diâmetro externo, girando em misturador rotativo com velocidade periférica de 84 cm/seg. As cargas eram constituídas de 400 g de mistura e 200 g de cilindros de borracha, cujas dimensões são 3 cm de altura e 1,5 cm de diâmetro. O tempo de homogeneização foi mantido constante e igual a 24 horas. A perda de material nesta operação foi de 0,25%, em média. Nenhum aglomerante ou lu-

brificante foram adicionados à mistura nesta fase de preparação para posterior compactação. É óbvia a observação de que a preparação é crítica no sentido de se conseguir um núcleo deformado homogêneo.

Análise granulométrica das misturas prontas para serem compactadas pode ser observada na figura 2.

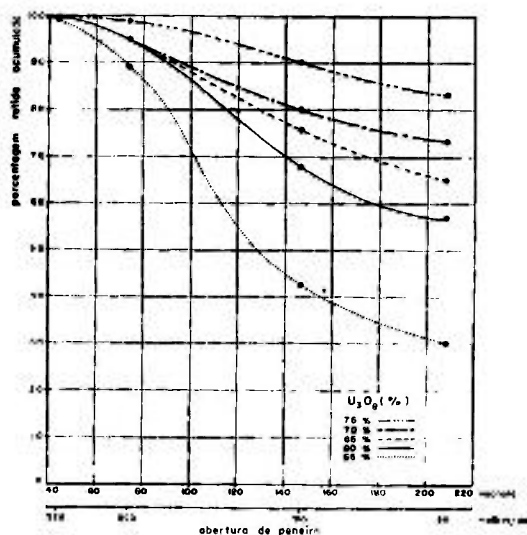


Fig. 2 — Análise granulométrica das misturas de U₃O₈ e Al prontas para serem compactadas.

Para o atendimento das especificações dimensionais decorrentes das imposições de laminação foi realizado um estudo prévio de compactabilidade das diversas misturas. A Tabela II apresenta as densidades solta, batida, limite e aparente na cavidade da matriz, das dispersões pesquisadas.

TABELA II — Características de densidade das dispersões para a compactação

Teor U ₃ O ₈ (%)	Densidade solta (g/cm ³)	Densidade batida (g/cm ³)	Densidade limite (g/cm ³)	D.A.C.M. * (g/cm ³)
55	1,4 ± 0,1	2,3 ± 0,1	2,5 ± 0,1	1,3 ± 0,1
60	1,5 ± 0,1	2,3 ± 0,1	2,6 ± 0,1	1,3 ± 0,1
65	1,6 ± 0,1	2,4 ± 0,1	2,7 ± 0,1	1,3 ± 0,1
70	1,4 ± 0,1	2,4 ± 0,1	2,7 ± 0,1	1,2 ± 0,1
75	1,2 ± 0,1	2,0 ± 0,1	2,4 ± 0,1	1,3 ± 0,1
100	1,4 ± 0,1	1,8 ± 0,1	1,9 ± 0,1	1,3 ± 0,1

(*) Densidade aparente da dispersão na cavidade da matriz.

A figura 3 apresenta a densidade teórica de misturas binárias U₃O₈-Al em função do teor de U₃O₈ presente.

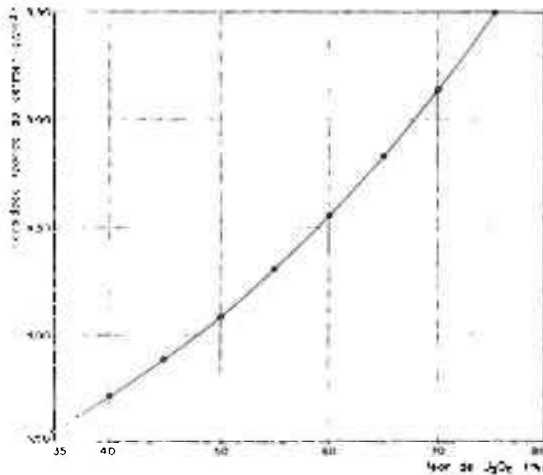


Fig. 3 -- Densidade teórica do "cermet", calculada a partir das densidades dos constituintes, em função do teor da fase cerâmica.
 Densidade da $U_3O_8 = 8,39 \text{ g/cm}^3$.
 Densidade do $Al = 2,694 \text{ g/cm}^3$.

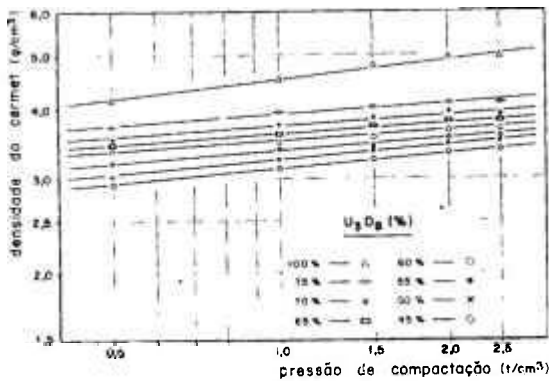


Fig. 4 -- Variação da densidade a verde do "cermet" em função da pressão de compactação, para diversas composições.

Determinaram-se, dest'arte, a interrelação entre densidade e pressão de compactação (fig. 4) e a relação de volumes antes e depois

da compactação (relação de compactação) a várias pressões (Tabela III).

TABELA III -- Relação de compactação das diversas dispersões em função da pressão da compactação

Teor de U_3O_8 (%) \ Pressão (t/cm^2)	0,5	1,0	1,5	2,0	2,5
55	2,4	2,6	2,6	2,7	2,7
60	2,5	2,6	2,7	2,8	2,8
65	2,6	2,7	2,7	2,8	2,9
70	2,8	3,1	3,1	3,3	3,3
75	3,2	3,4	3,5	3,5	3,6
100	3,6	3,7	3,7	3,8	4,0

Para este levantamento de dados de compactação foram prensadas pastilhas cilíndricas com 22 mm de diâmetro, 35 g de massa e relação altura/diâmetro de 1,2. Empregou-se matriz flutuante com o volume da cavidade mantido constante e igual a $26,7 \text{ cm}^3$. O sistema de compactação foi o de dupla ação e a prensa utilizada foi hidráulica manual, com 25 t de esforço máximo.

A compactação dos "cermets" (briquetes paralelepíedicos) foi realizada empregando-se matriz desmontável de aço, com cavidade medindo $65 \times 50 \times 51$ milímetros. Uma prensa hidráulica manual de 80 t de esforço máximo serviu na compactação dos briquetes por simples-ação. O carregamento da matriz foi realizado manualmente, tendo o pó ocupado, apenas 31% do volume da cavidade. Aplicou-se estearato de zinco para lubrificar as superfícies contactantes do punção móvel superior e das paredes internas da cavidade. A Tabela IV fornece os característicos dimensionais dos briquetes no estado compactado.

TABELA IV -- Características dos briquetes no estado compactado

Teor de U_3O_8 (%)	Pressão de compactação (t/cm^2)	Comprimento (cm)	Largura (cm)	Espessura (cm)	Massa (g)	Densidade (g/cm^3)	Porcentagem da densidade teórica
55	0,5	$5,004 \pm 0,002$	$6,512 \pm 0,002$	$0,610 \pm 0,001$	$63,915 \pm 0,001$	$3,22 \pm 0,01$	74,7
60	0,5	$5,000 \pm 0,002$	$6,516 \pm 0,002$	$0,610 \pm 0,001$	$66,982 \pm 0,001$	$3,37 \pm 0,01$	74,1
65	0,6	$5,007 \pm 0,002$	$6,523 \pm 0,002$	$0,608 \pm 0,001$	$69,895 \pm 0,001$	$3,51 \pm 0,01$	72,7
70	0,6	$5,009 \pm 0,002$	$6,523 \pm 0,002$	$0,609 \pm 0,001$	$71,940 \pm 0,001$	$3,62 \pm 0,01$	70,3
75	0,5	$5,010 \pm 0,002$	$6,523 \pm 0,002$	$0,606 \pm 0,001$	$73,969 \pm 0,001$	$3,74 \pm 0,01$	68,0

Os briquetes a verde foram submetidos a um tratamento de pré-sinterização em atmosfera inerte do argônio, a 600°C, durante 60 minutos. A operação foi conduzida em mufla elétrica tubular semi-contínua, sendo os "cermets" carregados em botes de grafita que se deslocavam com velocidade média de aproximadamente 1 cm/min. A finalidade da pré-sinterização foi de facilitar a deformabilidade ulterior do núcleo na laminação e eliminar substâncias eventualmente presentes que poderiam dificultar a boa ligação núcleo-revestimento¹⁴. A Tabela V fornece os característicos dos briquetes após o tratamento de pré-sinterização acima descrito e a Tabela VI contém as variações dimensionais ocorridas.

Antes de serem entregues à laminação os briquetes eram medidos, pesados e envolvidos em papel de alumínio com 0,10 mm de espessura média. A manipulação dos mesmos deve ser delicada, pois se apresentam bastante friáveis. Os "cermets" foram estocados ao abrigo da umidade para evitar reabsorção de água.

3. TRANSFORMAÇÃO MECÂNICA: PRODUÇÃO DA CHAPA POR LAMINAÇÃO

As placas foram produzidas por co-laminação do material de revestimento e do núcleo, sendo o briquete já envolvido por papel de alumínio, alojado na cavidade da moldura em liga de alumínio 1100, com 6,4 mm de espessura, utilizando-se como cobertura duas chapas da mesma liga, com 4,8 mm de espessura. O conjunto foi soldado a arco sob argônio, medindo 16,0 mm de espessura total.

Antes da operação de solda, as molduras e as chapas de cobertura foram decapadas em solução de hidróxido de sódio 10%, a 80°C, por 1 minuto, seguida de lavagem por água e neutralização por ácido nítrico 50% em volume e nova lavagem com água.

O pré-aquecimento para o início de laminação teve a duração de 40 minutos, à temperatura de 600°C, sendo empregado forno de resistência. A programação dos passes revelou ser muito importante para a obtenção de núcleos deformados perfeitos, tanto no que diz respeito à

TABELA V — Características dos briquetes no estado pré-sinterizado

Teor de U_3O_8 (%)	Pressão de compactação (t/cm ²)	Comprimento (cm)	Largura (cm)	Espessura (cm)	Massa (g)	Densidade (g/cm ³)	Porcentagem da densidade teórica
55	0,5	5,022 ± 0,002	6,540 ± 0,002	0,614 ± 0,001	63,609 ± 0,001	3,16 ± 0,01	73,3
60	0,5	5,029 ± 0,002	6,553 ± 0,002	0,615 ± 0,001	66,731 ± 0,001	3,29 ± 0,01	72,3
65	0,6	5,035 ± 0,002	6,561 ± 0,002	0,615 ± 0,001	69,622 ± 0,001	3,43 ± 0,01	71,0
70	0,6	5,048 ± 0,002	6,575 ± 0,002	0,616 ± 0,001	71,647 ± 0,001	3,50 ± 0,01	68,0
75	0,5	5,050 ± 0,002	6,579 ± 0,002	0,613 ± 0,001	73,689 ± 0,001	3,62 ± 0,01	65,8

TABELA VI — Variações dimensionais percentuais dos briquetes com a pré-sinterização

Teor de U_3O_8 (%)	Pressão de compactação (t/cm ²)	Variação comprimento (%)	Variação largura (%)	Variação espessura (%)	Variação massa (%)	Variação densidade (%)
55	0,5	+ 0,36	+ 0,43	+ 0,66	- 0,48	- 1,9
60	0,5	+ 0,58	+ 0,41	+ 0,82	- 0,37	- 2,4
65	0,6	+ 0,56	+ 0,58	+ 1,2	- 0,39	- 2,3
70	0,6	+ 0,78	+ 0,80	+ 1,2	- 0,41	- 3,3
75	0,5	+ 0,80	+ 0,86	+ 1,2	- 0,38	- 3,2

TABELA VII --- Características de placas contendo núcleos constituídos por "cermets" de U_3O_8 - Al com altas percentagens do constituinte cerâmico

Características		% U_3O_8	55,0	60,0	65,0	70,0	75,0
Comprimento da chapa	(mm)		355 ± 1	355 ± 1	355 ± 1	355 ± 1	355 ± 1
Largura da chapa	(mm)		79 ± 1	79 ± 1	79 ± 1	79 ± 1	79 ± 1
Espessura da chapa	(mm)		2,46 ± 0,01	2,47 ± 0,01	2,45 ± 0,01	2,46 ± 0,01	2,47 ± 0,01
Espessura do revestimento	(mm)						
Peso da chapa	(g)	(1)	0,79 ± 0,01	0,80 ± 0,01	0,80 ± 0,01	0,80 ± 0,01	0,80 ± 0,01
Comprimento do núcleo	(mm)		204,541 ± 0,02	205,225 ± 0,02	206,136 ± 0,02	211,051 ± 0,02	213,370 ± 0,02
Largura do núcleo	(mm)		310,1 ± 0,2	306,4 ± 0,2	310,5 ± 0,2	309,4 ± 0,2	308,0 ± 0,2
Espessura do núcleo	(mm)	(1)	66,0 ± 0,2	66,0 ± 0,2	66,0 ± 0,2	66,0 ± 0,2	66,0 ± 0,2
Densidade do cermet	(g/cm ³)	(2)	0,88 ± 0,01	0,87 ± 0,01	0,85 ± 0,01	0,86 ± 0,01	0,87 ± 0,01
% densidade teórica			0,87 ± 0,04	0,88 ± 0,03	0,86 ± 0,03	0,86 ± 0,02	0,86 ± 0,07
Densidade do núcleo formado	(g/cm ³)	(3)	3,32 ± 0,01	3,25 ± 0,01	3,44 ± 0,01	3,49 ± 0,01	3,60 ± 0,01
% densidade teórica		(4)	77,0	72,0	71,2	67,8	65,3
Acréscimo de densidade	(%)	(5)	3,72 ± 0,01	3,73 ± 0,01	3,93 ± 0,01	4,00 ± 0,01	4,10 ± 0,01
Massa do briquete	(g)		86,3	82,0	81,4	77,7	74,5
U_3O_8 contido	(g)		12,1	13,7	14,2	14,6	13,9
U contido	(g)		67,16 ± 0,01	66,73 ± 0,01	69,72 ± 0,01	71,64 ± 0,01	73,78 ± 0,01
Al contido	(g)		36,94 ± 0,01	40,04 ± 0,01	45,32 ± 0,01	50,15 ± 0,01	55,33 ± 0,01
Relação U/Al total			31,32 ± 0,01	33,95 ± 0,01	38,43 ± 0,01	42,53 ± 0,01	46,92 ± 0,01
Massa de Al na região do núcleo	(g)		137,38 ± 0,01	165,22 ± 0,01	160,82 ± 0,01	160,90 ± 0,01	158,03 ± 0,01
Relação U/Al na região do núcleo			0,228	0,206	0,282	0,264	0,350
			117,22 ± 0,01	113,72 ± 0,01	112,59 ± 0,01	169,38 ± 0,01	105,95 ± 0,01
			0,267	0,299	0,341	0,389	0,443

OBSERVAÇÕES: (1) Espessura determinada por método hidrostático.
 (2) Espessura determinada por método metalográfico, média de dez determinações.
 (3) Densidade determinada por método hidrostático.
 (4) Valor relativo ao núcleo deformado.
 (5) Acréscimo após a laminação.

TABELA VIII --- Características de elementos combustíveis planos à base de dispersões de U_3O_8 de Al, desenvolvidos pela Divisão de Metalurgia Nuclear até 1966

Características		% U_3O_8	41,3	50,0	54,36 (1)	54,36
Comprimento da chapa	(mm)		649,0 ± 0,5	649,0 ± 0,5	610,00 ± 0,05	610,00 ± 0,05
Largura da chapa	(mm)		79,0 ± 0,5	79,0 ± 0,5	73,00 ± 0,05	73,00 ± 0,05
Espessura da chapa	(mm)		1,27 ± 0,01	1,26 ± 0,01	2,45 ± 0,01	2,41 ± 0,01
Espessura do revestimento	(mm)		0,40 ± 0,01	0,40 ± 0,01	0,28 ± 0,01	0,28 ± 0,01
Peso da chapa	(g)		188,25 ± 0,02	190,00 ± 0,02	334,694	338,5
Comprimento do núcleo	(mm)		593 ± 1	599 ± 1	599 ± 1	575 ± 1
Largura do núcleo	(mm)	(3)	66,5 ± 0,2	66,5 ± 0,2	65,75 ± 0,15	65,75 ± 0,15
Espessura do núcleo	(mm)	(4)	0,48 ± 0,01	0,47 ± 0,01	1,89 ± 0,01	1,85 ± 0,01
Espessura do núcleo	(mm)	(5)	0,46 ± 0,01	---	---	---
Densidade do cermet	(g/cm ³)		3,13 ± 0,01	3,19 ± 0,01	3,06 ± 0,01	3,08 ± 0,01
% Densidade teórica			83,5	78,2	77,7	78,2
Densidade do núcleo formado	(g/cm ³)	(6)	3,36 ± 0,01	3,49 ± 0,01	---	---
% Densidade teórica		(7)	89,6	85,5	---	---
Acréscimo de densidade	(%)	(8)	7,3	9,4	---	---
Massa do briquete	(g)		63,49 ± 0,01	64,84 ± 0,01	229,835 ± 0,001	228,2 ± 0,1
U_3O_8 contido	(g)		26,22 ± 0,01	32,42 ± 0,01	124,938 ± 0,001	124,6 ± 0,1
U contido	(g)		22,23 ± 0,01	27,49 ± 0,01	105,947 ± 0,001	105,7 ± 0,1
Al contido	(g)		162,03 ± 0,01	157,58 ± 0,01	210,004 ± 0,001	213,9 ± 0,1
Relação U/Al total			0,137	0,174	0,503	0,494
Massa de Al na região do núcleo	(g)		122,12 ± 0,01	118,13 ± 0,01	164,219 ± 0,001	161,6 ± 0,1
Relação U/Al na região do núcleo			0,182	0,233	0,645	0,654

OBSERVAÇÕES: (1) Dados referentes à chapa de núcleo contendo urânio enriquecido a 20% no isótopo U^{235} .
 (2) Espessura determinada por método hidrostático. No caso das chapas de 54,36% de U_3O_8 o valor é apenas estimado.
 (3) A largura do núcleo no caso das chapas de 54,36% de U_3O_8 é apenas estimado.
 (4) Espessura determinada por método hidrostático, à exceção das chapas de 54,36% de U_3O_8 .
 (5) Espessura determinada por método metalográfico, média de dez determinações.
 (6) Densidades determinadas por método hidrostático.
 (7) Valores relativos ao núcleo deformado.
 (8) Acréscimos calculados após a laminação.

plasticidade, como no que concerne à ligação núcleo-revestimento e ao paralelismo de bordas longitudinais e terminais do núcleo.

A laminação foi conduzida de modo a se obter pares de passes de igual redução, totalizando ao final, 83%. Os passes eram intercalados por reaquescimentos a 600°C. A espessura atingida após a laminação a quente foi de 2,60 mm.

À laminação a quente seguiram-se operações de localização do núcleo por meio de varredura da chapa com um contador Geiger-Müller

e corte de material de revestimento em excesso, mantendo-se, contudo, 5 cm além do núcleo, no sentido longitudinal e 1 cm, no sentido transversal. O acerto dimensional final foi realizado por laminação a frio para uma espessura de $2,45 \pm 0,02$ mm.

A Tabela VII apresenta os característicos metalúrgicos das placas obtidas. Na Tabela VIII estão indicados os dados referentes a placas de elementos combustíveis relativos a projetos anteriormente desenvolvidos, propiciando um confronto com os resultados obtidos no presente estudo.

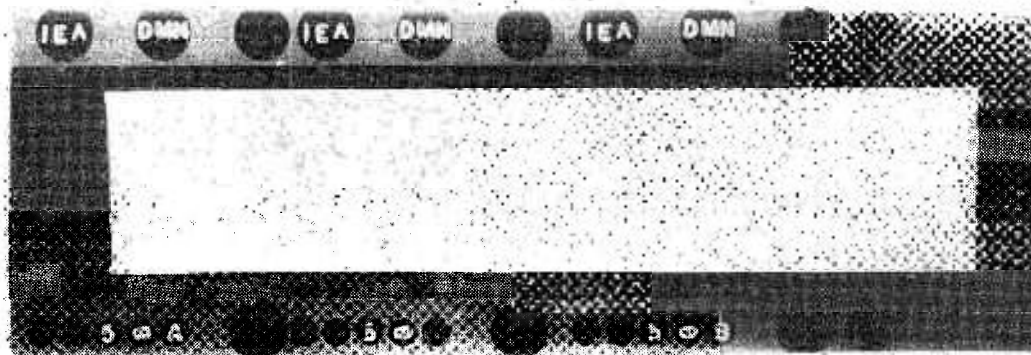


Fig. 5 — Montagem de radiografias de uma chapa contendo núcleo com 55% U_3O_8 — 45% Al (reduzida aproximadamente à terça parte no clichê).

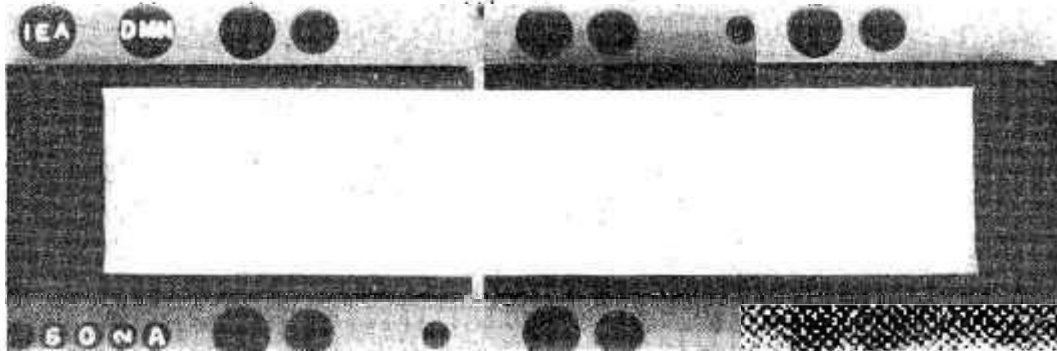


Fig. 6 — Idem figura 5 — núcleo com 60% U_3O_8 — 40% Al.

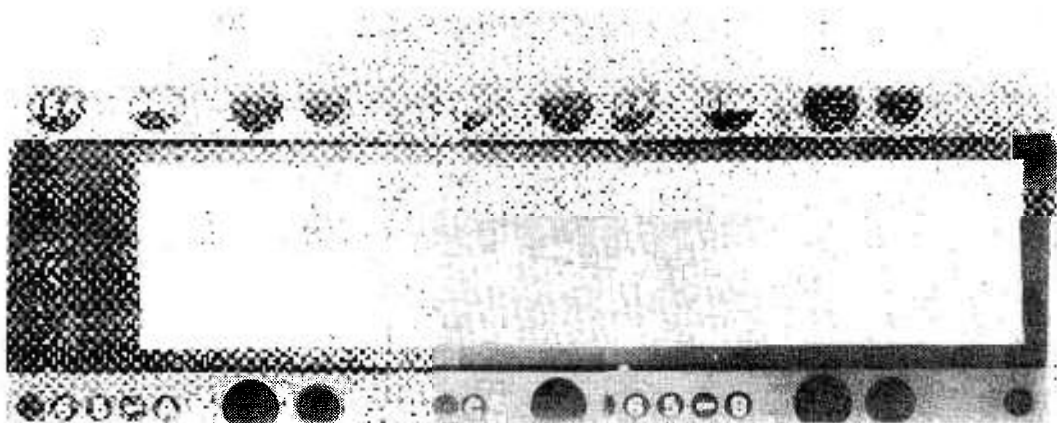


Fig. 7 -- Idem figura 5 — núcleo com 65% U_2O_3 -- 35% Al.

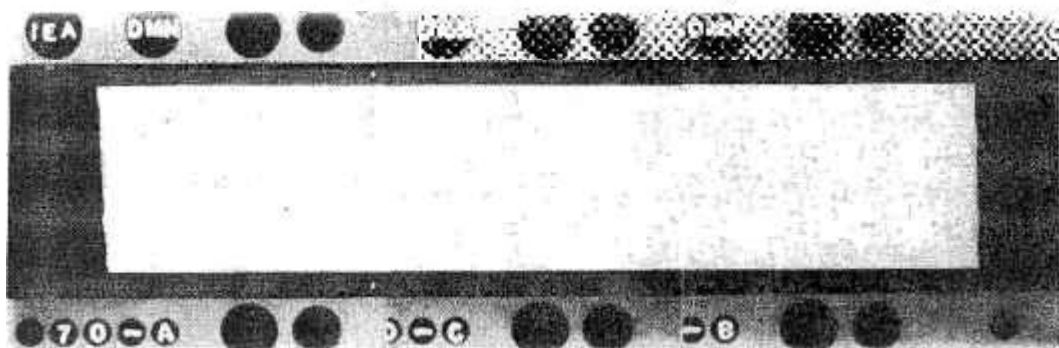


Fig. 8 -- Idem figura 5 — núcleo com 70% U_3O_8 -- 30% Al.

4. ENSAIOS ¹⁵

4.1. *Ensaio de empolamento* — Este ensaio visou a detecção de regiões em que existam soluções de continuidade no “cermet” ou má ligação metalúrgica na interface núcleo-revestimento. Tais regiões seriam indesejáveis num elemento combustível, pois poderiam acarretar ruptura do revestimento protetor do núcleo, bem como dificultar o arrefecimento térmico do elemento, em operação no reator. Após o ensaio as chapas não apresentaram zonas de empolamento.

4.2. *Radiografias* — As placas foram radiografadas geralmente duas vezes durante a fabricação: a primeira, após a laminação a quente e a segunda, após a laminação a frio. A finalidade das radiografias era de verificação da homogeneidade do núcleo deformado e da definição de sua geometria. As radiografias foram obtidas com filme “DuPont-Cronex II — Medical X-Ray”, sob 65 kV, corrente de 13,5 mA e 8 seg. de exposição. As placas radiografadas apresentaram-se homogêneas e com regularidade dos bordos laterais e terminais, conforme revelam as figuras 5, 6, 7, 8 e 9.

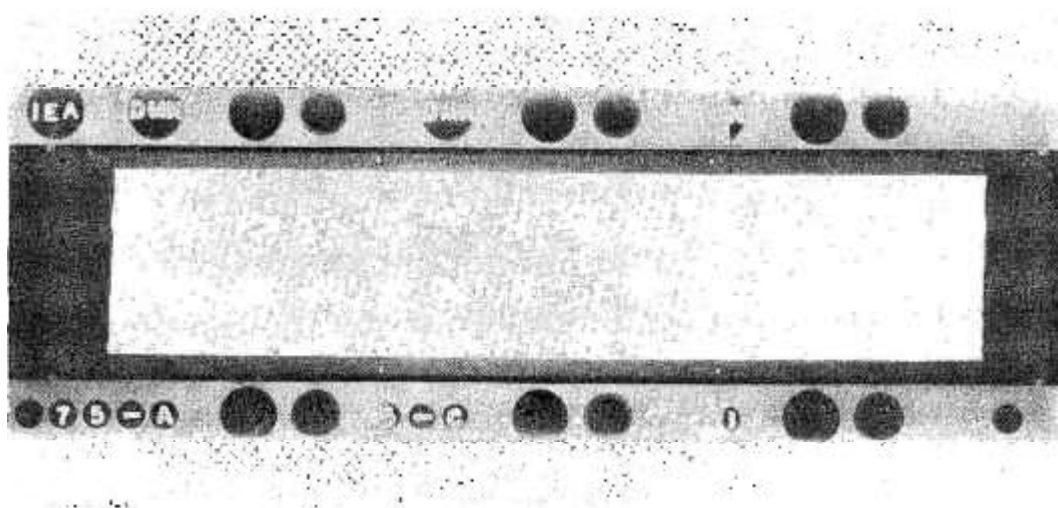


Fig. 9 — Idem figura 5 — núcleo com 75% U_3O_8 — 25% Al.

4.3. *Exames metalográficos* — Estes foram executados sobre amostras de placas já radiografadas, montadas cuidadosamente em baquelita. O polimento foi levado até pó de diamante de 1 micron, intercalado com ataque em

solução de HF a 10% (volume), a fim de evitar mascaramento da observação metalográfica da ligação núcleo-revestimento. Procurou-se observar, ainda, o aspecto da estrutura orientada no núcleo deformado quanto à homogeneidade. As micrografias obtidas são as das figuras 10, 11, 12, 13 e 14.



Fig. 10 — Micrografia de corte transversal à direção de laminação, sem ataque, evidenciando homogeneidade da dispersão, após a laminação. Núcleo com 55% U_3O_8 — 45% Al. Aumento: 500 × (reduzida à metade no clichê).



Fig. 12 — Idem figura 10 — núcleo com 65% U_3O_8 — 35% Al.

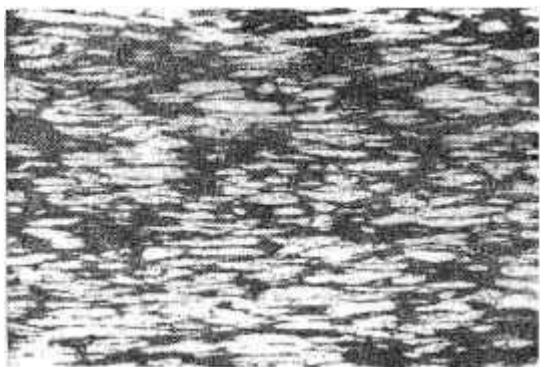


Fig. 11 — Idem figura 10 — núcleo com 60% U_3O_8 — 40% Al.

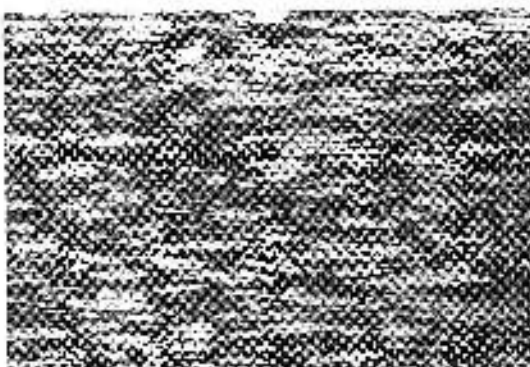


Fig. 13 — Idem figura 10 — núcleo com 70% U_3O_8 — 30% Al.

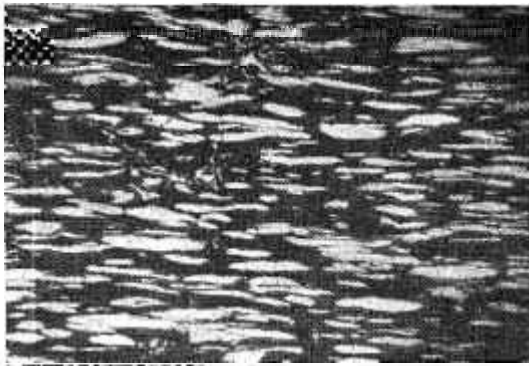


Fig. 14 — Idem figura 10 — núcleo com 75% U_3O_8 — 25% Al. Observa-se a maior concentração de óxido (fase escura) e a menor concentração de metal (fase clara) da figura 10 para a figura 14.

4.4. *Medidas hidrostáticas* — As medidas hidrostáticas foram efetuadas com a finalidade de determinar o volume do núcleo deformado, na densidade e espessura final. O volume do núcleo deformado é dado por¹⁶:

$$V_n = \frac{M_p - M_i}{\rho_a} - \frac{(M_p - M_n)(1 + 3\alpha\Delta t)}{\rho_r} \quad (I)$$

onde:

V_n = volume do núcleo deformado

M_p = massa da placa

M_i = massa correspondente à placa imersa

ρ_a = massa específica do fluido de imersão (água), à temperatura (t)

M_n = massa do núcleo

α = coeficiente de dilatação linear do material de revestimento

ρ_r = massa específica do revestimento, à temperatura de referência (t_0)

$\Delta t = t - t_0$

A densidade do núcleo deformado (ρ_n) é dada por:

$$\rho_n = \frac{M_n}{V_n} \quad (II)$$

A espessura do núcleo deformado (E) é dada por:

$$E = \frac{V_n}{LC} \quad (III)$$

onde L e C são, respectivamente largura e comprimento do núcleo medidos diretamente de radiografia, mas corrigidos do efeito de penumbra.

No presente estudo, porém, como se assumiu de antemão que:

$$t = t_0$$

o volume do núcleo passou a ser calculado por:

$$V_n = \frac{M_p - M_i}{\rho_a} - \frac{M_p - M_n}{\rho_r} \quad (IV)$$

A figura 15 ilustra o arranjo especial empregado para a realização dessas medidas.

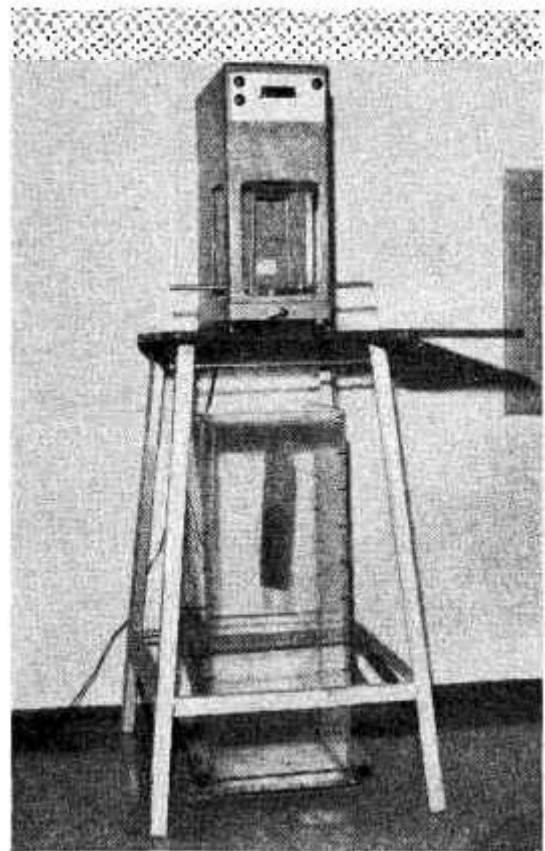


Fig. 15 — Arranjo especial para se efetuar medidas hidrostáticas destinadas à determinação indireta da densidade e da espessura final do núcleo.

5. CONCLUSÕES

1. Observou-se que o condicionamento (mistura e homogeneização) das dispersões de U_3O_8 — Al provoca um aumento do tamanho médio dos granulos do pó, tanto mais acentuado, quanto maior o teor de U_3O_8 .

2. A relação de compactação aumenta com a pressão, fixada a composição do pó e a uma dada pressão a relação cresce com o aumento da porcentagem de U_3O_8 .

3. No intervalo de pressões estudadas, a densidade do compactado aumenta linearmente com a pressão de compactação, quando locadas em gráfico bilogarítmico.

4. As dimensões a verde dos "cermets" sofrem variação positiva com a pré-sinterização: comprimento e largura inferiores a 1% e a espessura, 1% aproximadamente.

5. A pré-sinterização acarretou perda de massa inferior a 0,5% e uma queda de densidade compreendida entre 1,5 e 3,5%.

6. Os briquetes a serem co-laminados apresentaram densidades compreendidas entre 65,3% e 77,0% das respectivas densidades teóricas, decrescentes com o aumento do teor de U_3O_8 .

7. Sem embargo, no que diz respeito à plasticidade do núcleo deformado, foram obtidos resultados satisfatórios até uma espessura final total de $2,45 \pm 0,02$ mm com núcleo de $0,86 \pm 0,02$ mm.

8. O incremento de densidade do núcleo deformado pelo processo de laminação permaneceu no intervalo 12,1% a 14,6%.

9. A relação U/Al, na região correspondente ao núcleo, aumentou de 0,267 para 0,443 com o incremento do teor de U_3O_8 de 55% para 75%.

10. A relação U/Al na região do núcleo caracteriza melhor a concentração de urânio presente na placa, do que a relação U/Al total, pois independe das dimensões externas da chapa, dependendo somente da espessura de revestimento e do teor de U_3O_8 contido.

11. Pelo ensaio de empolamento pode-se supor que, apesar dos teores de Al presentes no núcleo serem relativamente baixos, houve caldeamento núcleo-revestimento.

12. As radiografias das placas evidenciam regularidade geométrica do núcleo deformado e ausência de soluções de continuidade de homogeneidade da composição do núcleo, pelo enegrecimento uniforme.

13. Os exames metalográficos não evidenciaram ausência de ligação metalúrgica na interface núcleo-revestimento, bem como heterogenei-

dades grosseiras na estrutura fibrada do "cermet" deformado.

14. A medida hidrostática indireta da espessura do núcleo deformado, além de ser afetada por erro relativo pequeno, permite uma boa avaliação da mesma por método não destrutivo.

REFERÊNCIAS

- BIDWELL, R. M.; HAYDT, H. M.; FREITAS, C. T. de & SOUZA SANTOS, T. D. de — Nota preliminar sobre propriedades e estruturas de dispersões U_3O_8 -Al. Boletim da ABM, v. 20, n.º 84, p. 567-576, dezembro 1964.
- SOUZA SANTOS, T. D. de; HAYDT, H. M.; FREITAS, C. T. de — Fabricação de elementos combustíveis para o Reator "Argonauta" do Instituto de Engenharia Nuclear. Metalurgia, v. 21, n.º 90, p. 369-376, maio 1965.
- SOUZA SANTOS, T. D. de; HAYDT, H. M.; FREITAS, C. T. de — Principais características metalúrgicas dos elementos combustíveis produzidos para o Reator "Argonauta" do Instituto de Engenharia Nuclear. Metalurgia, v. 21, n.º 97, p. 909-921, dezembro 1965.
- SOUZA SANTOS, T. D. de; HAYDT, H. M.; FREITAS, C. T. de; GENTILE, E. F.; CINTRA, S. H. L. — Características de placas delgadas para elementos combustíveis contendo dispersões de U_3O_8 -Al. Metalurgia, v. 22, n.º 109, p. 935-940, dezembro 1966.
- SOUZA SANTOS, T. D. de; CAPOCCHI, J. D. T.; CINTRA, S. H. L. — Estudo experimental de fabricação de elementos combustíveis planos dotados de múltiplos "cermets". Apresentado no XXII Congresso Anual da ABM. (A ser impresso), julho 1967.
- HAYDT, H. M.; CINTRA, S. H. L. — Nota preliminar sobre a fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleos de ligas Al-U. Metalurgia, v. 23, n.º 121, p. 955-959, dezembro 1967.
- SOUZA SANTOS, T. D. de; HAYDT, H. M.; FREITAS, C. T. de — Development Studies for Argonaut fuel plates fabrication. Seção III, n.º 37, Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors, IAEA, São Paulo, novembro 1963.
- SOUZA SANTOS, T. D. de; HAYDT, H. M.; FREITAS, C. T. de — Developments in fuel fabrication for Research Reactor in Brazil. Proceedings, Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, vol. 10, p. 26-31, ONU, New York, 1965.
- SOUZA SANTOS, T. D. de; HAYDT, H. M.; FREITAS, C. T. de — Experimental studies on the fabrication of thin fuel plates with U_3O_8 -Al "cermets". Proceedings, Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, v. 10, p. 33-37, ONU, New York, 1965.
- CUNNINGAN, J. E.; BEAVER, R. J.; THURBER, W. C.; WAUGH, R. C. — Fuel dispersions in aluminum base elements for Research Reactors. TID-7546, v. 1, p. 269-297, USAEC, 1957.
- MURRAY, P.; WILLIAMS, J. — Ceramic and cermet fuels. Progress in Nuclear Energy — Metallurgy and Fuels — Série V, v. 4, p. 520-542, Pergamon Press, 1961.

12. SOUZA SANTOS, T. D. de; HAYDT, H. M.; FREITAS, C. T. de; CAPOCCHI, J. D. T.; CINTRA, S. H. L.; GENTILE, E. F.; PUCCINI, E. C. — Principais características metalúrgicas dos elementos combustíveis fabricados para conjunto sub-crítico "RE-SUCO". Metalurgia, v. 23, n.º 112, p. 175-190, março 1967.
13. Certificado Oficial do Instituto de Pesquisas Tecnológicas de São Paulo, C.O. 261.474, de 23-2-1966.
14. Idem 1, p. 569.
15. Idem 4, p. 936-937.
16. FREITAS, C. T. de — Comunicação pessoal.

DISCUSSÃO

P. G. PAULA LEITE (1) — As radiografias exibidas dos elementos combustíveis, apresentam realmente uma excepcional uniformidade quanto a parte de contorno. O Eng.º Capocchi afirma que as radiografias exibem também homogeneidade quanto ao enegrecimento. Gostaria de saber se na análise dessa homogeneidade foi usado o densitômetro?

J. D. TRANI CAPOCCHI (2) — Não. Na fase em que estamos, do desenvolvimento dessas chapas, fizemos uma inspeção visual.

S. H. LEITE CINTRA (3) — No que se refere a utilização de densitômetro, o aparelho que temos não permite análise, face à sua precisão. Tem uma precisão de leitura de apenas 5%, que é superior as variações que ocorrem no enegrecimento da chapa, e portanto tôdas as leituras do densitômetro seriam iguais. Visualmente, temos mais sensibilidade do que com o uso do nosso aparelho, cuja janela é de 1 cm².

JUAN NICOLAS BÁEZ (4) — Sob o ponto de vista da sensibilidade da leitura de radiografias, posso dizer que o olho é um elemento muito sensível, e que não há instrumento que possa funcionar com dois ou três ftons, como o faz o olho. Mas queria perguntar que voltagem e corrente os senhores utilizaram para radiografar estas chapas com alto teor de urânio?

J. D. TRANI CAPOCCHI — Empregamos máquina de 65 kV, corrente de 13,5 mA e a exposição de 8 segundos. Utilizamos filme radiográfico "DuPont — Cronex II — Medical X-Ray".

J. N. BÁEZ — Temos uma máquina de até 250 kV e preferimos trabalhar com voltagens próximas as de maior absorção pelo urânio, com o que obtemos um contraste radiográfico muito mais elevado. Trabalhamos a 170 kV aproximadamente.

OSCAR WORTMAN (5) — Um dos problemas que temos, ao incorporar altos teores de U₃O₈, é a possibilidade que existe da redução do óxido pelo alumínio e posterior formação de uma película superficial de

urânio-alumínio, quando mantida a mistura em altas temperaturas durante tempos longos. Perguntaria se os senhores fizeram tratamentos a altas temperaturas durante tempos longos, para ver como influem sobre as propriedades mecânicas?

J. D. TRANI CAPOCCHI — No desenvolvimento desse processo procuramos manter o menor tempo possível a temperatura de 600°C, porque com isso evitamos as reações do óxido com o alumínio. Os aquecimentos foram os seguintes: na fase da metalurgia do pó, o "cermet" a verde é submetido a um tratamento a 600°C, durante 60 minutos, sob argônio, no sentido de melhorar as condições de trabalhabilidade mecânica; e durante a laminação, a operação de solda, o aquecimento inicial e os reaquecimentos são levados a efeito em tempos relativamente curtos, que somados dão 60 minutos a temperatura de 600°C. No que se refere à reação óxido-alumínio, sabe-se que o U₃O₈ reage com o alumínio, a 600°C, para formar UO₂ e Al₂O₃. A conversão a UO₂ aumenta com a temperatura e o tempo e a variação de volume que ocorre é desprezível (Fig. 16). Pode-se observar pelo gráfico que para tempos curtos, duas horas em nosso caso, a formação de UO₂ é insignificante, conforme a conclusão a que chegaram Waugh e Beaver ao estudarem dispersões com 56,4% de U₃O₈. Quanto à formação de compostos intermetálicos de urânio e alumínio, estes mesmos pesquisadores afirmam que, por difração de raio-X, não foi detectada sua presença após 500 horas a 600°C.

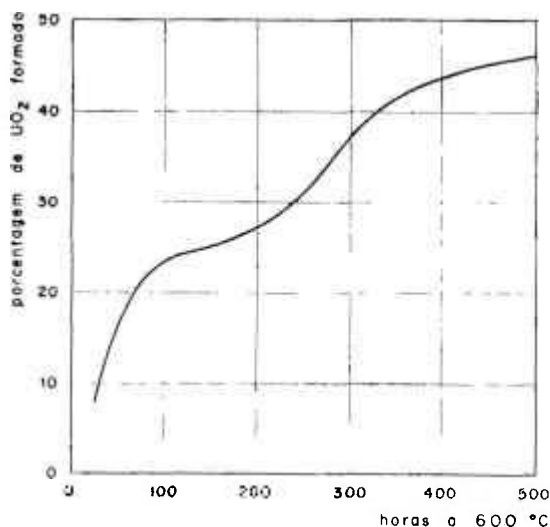


Fig. 16 — Formação de UO₂ durante o tratamento térmico de uma chapa com núcleo com 56,4% U₃O₈-43,6% Al a 600°C (WAUGH, R. C. e BEAVER, R. J., "Recent Developments in the Powder Metallurgy Application of Uranium Oxides to Aluminum Reactor Fuel Elements", OKNL, 1957).

O. WORTMAN — Os senhores tiveram problemas no ensaio de empolamento?

J. D. TRANI CAPOCCHI — Produzimos chapas isentas de empolamentos. Agora faltaria talvez, já numa segunda fase, submete-las a ensaios em reator. Mas, até o presente, podemos assegurar que estas chapas passaram com o mesmo rigor por todos os ensaios tecnológicos aos quais outros elementos combustíveis foram submetidos. O ensaio de empolamento foi realizado a 450°C, por uma hora e não foi observada zona de má ligação metalúrgica do núcleo com o material de revestimento, mesmo nas regiões terminais do núcleo.

- (1) Membro da ABM e na Presidência da Comissão; Professor na Escola de Engenharia da UFRJ e Engenheiro do Arsenal da Marinha; Rio de Janeiro, GB.
- (2) Membro da ABM; da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.
- (3) Membro da ABM; da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.
- (4) Membro da ABM; Pesquisador do Departamento de Metalurgia da Comisión Nacional de Energia Atômica da República Argentina; Buenos Aires.
- (5) Membro da ABM; Pesquisador do Departamento de Metalurgia da Comisión Nacional de Energia Atômica da República Argentina; Buenos Aires.

P. G. PAULA LEITE — Desejaria saber se está em cogitação, pela Divisão de Metalurgia Nuclear, o uso de ultra-som para verificação de falta de ligação entre núcleo e revestimento?

T. D. SOUZA SANTOS (6) — Sim, está em cogitação. Tencionamos usar o ultra-som como meio complementar. Acreditamos que este ensaio não seja crítico de partida, pois devemos sempre submeter a chapa a ensaio de empolamento, que é mais sensível a qualquer irregularidade do que o ultra-som. Em todo o caso vamos realizá-lo.

P. G. PAULA LEITE — Perguntaria ainda se esse ensaio de empolamento em outros países é realizado em tempo maior do que uma hora?

T. D. SOUZA SANTOS — Em tôdas as especificações, que temos, de fabricação de elementos combustíveis dêste tipo, sempre se faz o ensaio a temperatura de 450°C a 550°C, durante uma hora.

O. WORTMAN — A preparação superficial, antes da co-laminação é similar às das chapas de liga alumínio-urânio?

J. D. TRANI CAPOCCHI — O tratamento superficial das molduras e das chapas de revestimento é inteiramente similar. Fazemos uma decapagem em soda, durante um minuto, seguida de lavagem, neutralização com ácido nítrico e nova lavagem, após o que o briquete é alojado na cavidade da moldura.

(6) Conselheiro da ABM; Professor Catedrático e Diretor da Escola Politécnica da USP; Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica; São Paulo, SP.