

34: 072737

BRO 343202



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE  
DE SÃO PAULO

**OBTENÇÃO DO  $U_3O_8$  PARA COMBUSTÍVEIS TIPO MTR A  
PARTIR DO TRICARBONATO DE AMÔNIO E  
URANILO (T.C.A.U.)**

**GILBERTO HAGE MARCONDES**

Dissertação apresentada como parte  
dos requisitos para obtenção do Grau  
de Mestre em Ciências na Área de  
Reatores Nucleares de Potência e  
Tecnologia de Combustível Nuclear.

Orientador:  
Dr. Humberto Gracher Riella

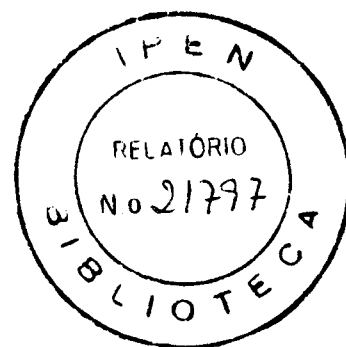
**São Paulo  
1999**

039.543.4

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**  
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**OBTENÇÃO DE  $U_3O_8$  PARA COMBUSTÍVEIS TIPO  
MTR A PARTIR DO TRICARBONATO DE AMÔNIO E  
URANILO – TCAU.**

**GILBERTO HAGE MARCONDES**



Dissertação apresentada como parte dos requisitos para obtenção do grau de Mestre em Ciências na Área de Reatores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear.

**Orientador:**  
**Dr. Humberto Gracher Riella**

**SÃO PAULO**

**1999**

**A meus pais - Alice e Glauco, esposa e filha - Cristina e Mariana.**

## AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Humberto Gracher Riella, pela orientação, motivação e confiança dispensadas ao longo deste trabalho.

Aos colegas Michelangelo Durazzo, Ricardo M. Leal Neto, José Antônio B. de Souza e Elita U. Frajndlich, sem os quais este trabalho não chegaria a seu final, pela amizade, incentivo, sugestões e facilidades concedidas.

Pela amizade e consideração, aos colegas Davilson, Felipe, Fernando, Henrique, Izildinha, João Batista, Jamil, Jorje, José Marcos, José Fidelis, Sérgio Rabello, Olair, Edeval, Wesley, Reinaldo, Solange, Suzana, Eneida, Stela., Fábio Vaz, Eliseu e Walter Pereira, com quem, além daqueles injustamente omitidos, divido este trabalho.

Aos colegas Nildemar e Celso, pela amizade e pelas análises de microscopia eletrônica.

Ao colega Valter Ussui, pelo apoio nos mais diversos assuntos, especialmente os de informática.

À colega Glauca, pelo incentivo e colaboração em assuntos voltados à salvaguarda de materiais.

Aos colegas Nelson Batista, Luzinete, Sônia H. M. Castanho, Wagner Terazan, Waldir, Lia, Jamil, Oswaldo, Valquíria, Odília, Roberto, Maurício e Dolores, pelo apoio, incentivo e amizade.

Ao Dr. Clauer T. de Freitas, pela confiança e consideração sempre demonstrados.

Aos colegas Ronildo, Fogaça e Paulo Lainetti, pela motivação e sugestões oportunas.

Aos Drs Luís Filipe de Lima, Arnaldo Paes de Andrade, Waldemar Monteiro, Francisco Ambrozio Filho, Ana Helena Bressiani e Reginaldo Mucillo, pela consideração e ensinamentos.

Ao Dr. José C. Bressiani, por intermediar nosso contacto com o C.D.T.N.

Ao Dr. Lúcio C. M. Pinto, pela amizade, ensinamentos e por viabilizar o acesso ao seu Analisador Microestrutural Quantikov.

Aos colegas Couto, Marina, Glauson, Dileusa, Mariano e Raquel, pelas facilidades e apoio na realização da metalografia e análise de imagens de placas combustíveis.

Às colegas, Rosa, Daniela e Yoni, pela atenção e facilidades oferecidas nos laboratórios pelos quais são responsáveis.

Aos Drs. Paula Beker e Luís Carlos Rafaelle, pelo interesse, amizade e competência profissional.

Ao Dr. Cláudio Rodrigues, superintendente do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, ao Dr. Spero Penha Morato, ex-superintendente e à própria Instituição, pela oportunidade e facilidade concedidas.

## **OBTENÇÃO DE PÓ DE $U_3O_8$ PARA COMBUSTÍVEIS TIPO MTR A PARTIR DO TRICARBONATO DE AMÔNIO E URANILO – TCAU.**

**Gilberto Hage Marcondes**

### **RESUMO**

Este trabalho descreve um método alternativo de obtenção de pó de  $U_3O_8$  a ser empregado na fabricação de elementos combustíveis tipo MTR, tais quais os consumidos pelo Reator IEA-R1m, calcinando-se o tricarbonato de amônio e uranilo (TCAU) e sinterizando-se o  $U_3O_8$  dele proveniente. Após os devidos tratamentos, foi obtido um pó de  $U_3O_8$  que, caracterizado química e fisicamente, mostrou-se adequado ao emprego como combustível, o mesmo ocorrendo com as placas combustíveis dele originadas. As distribuições de tamanho de partículas de  $U_3O_8$  nas placas laminadas foram determinadas por metalografia quantitativa com análise de imagens. São apresentados resultados promissores quanto à aplicabilidade do método proposto, aliados ao aspecto positivo de partir-se do TCAU como matéria prima para a obtenção tanto do pó de  $U_3O_8$  utilizado na fabricação de combustíveis tipo MTR, como do pó de  $UO_2$  utilizado em combustíveis tipo PWR, na forma de pastilhas sinterizadas.

## OBTAINMENT OF $U_3O_8$ POWDER FOR MTR FUEL TYPE ELEMENTS STARTING FROM AMMONIUM URANIL CARBONATE (AUC)

Gilberto Hage Marcondes

### ABSTRACT

This work describes a method of obtaining  $U_3O_8$  powder for MTR type fuel elements by AUC calcination and sintering at specific conditions. The obtained  $U_3O_8$  powder has the characteristics suitable to be used as a nuclear fuel. It can be checked by analyzing both its physical and chemical properties and those ones resulting from the obtained fuel plates. Metalographic tests were carried out in those fuel plates and the corresponding digital images analyzed in terms of  $U_3O_8$  particle size volume distribution, by using the Quantikov <sup>[1]</sup> System for microstructural analysis. The main results show the applicability of the method, due to the reduced number of processing steps, and the standardization of the raw material -AUC- that can be used to produce both  $UO_2$  and  $U_3O_8$  powder for PWR and MTR type fuel, respectively.

## SUMÁRIO

	Página
<b>1. INTRODUÇÃO E OBJETIVO.....</b>	<b>01</b>
<b>2. O REATOR IEA-R1m E SEU COMBUSTÍVEL.....</b>	<b>07</b>
2.1 Descrição do reator IEA-R1m	
2.2 O combustível tipo MTR.....	12
2.2.1 Um breve histórico	
2.2.2 O uso de cermetes $U_3O_8-Al$ e o comportamento da dispersão sob irradiação.....	17
2.2.3 O processo de fabricação do combustível tipo MTR.....	22
2.2.4 Os processos de obtenção do pó de $U_3O_8$ .....	26
<b>3. PARTE EXPERIMENTAL.....</b>	<b>32</b>
3.1 Matéria prima	



	página
3.2 Processamento dos lotes de TCAU.....	32
3.2.1 Processamento do <i>lote experimental</i>	
3.2.1.1 Calcinação do TCAU a $U_3O_8$ .....	33
3.2.1.2 Classificação granulométrica do $U_3O_8$ calcinado.....	34
3.2.1.3 Sinterização do $U_3O_8$	
3.2.1.4 Classificação granulométrica do $U_3O_8$ sinterizado.....	35
3.2.2 Processamento do <i>lote de comprovação</i>	
3.2.2.1 Calcinação do TCAU a $U_3O_8$	
3.2.2.2 Classificação granulométrica do $U_3O_8$ calcinado.....	36
3.2.2.3 Sinterização do $U_3O_8$	
3.2.2.4 Classificação granulométrica do $U_3O_8$ sinterizado	
3.3 Fabricação das placas combustíveis.....	37
3.3.1 Mistura e compactação dos pós de $U_3O_8$ e de alumínio.....	38
3.3.2 Desgaseificação de briquetes.....	40
3.3.3 Montagem dos conjuntos para laminação	
3.3.4 Laminação dos conjuntos em placas combustíveis	
3.4 Preparação de amostras para metalografia.....	41
3.4.1 Corte metalográfico	
3.4.2 Embutimento das amostras.....	42
3.4.3 Impregnação dos corpos de prova	
3.4.4 Polimento dos corpos de prova.....	43

3.5	Métodos de caracterização físico-química de pós.....	44
3.5.1	Termogravimetria do TCAU	
3.5.2	Determinação do teor de impurezas do $U_3O_8$	
3.5.3	Difratometria de Raios-x	
3.5.4	Área de Superfície Específica do $U_3O_8$ .....	45
3.5.5	Microscopia Eletrônica de Varredura	
3.5.6	Porosimetria de Mercúrio	
3.6	Métodos de caracterização de placas combustíveis.....	48
3.6.1	Densidades de núcleos de placas laminadas	
3.6.2	Radiografia das placas combustíveis.....	49
3.6.3	Análise de imagens da metalografia das placas laminadas.....	50
3.6.4	Medidas de espessura de revestimento de núcleos.....	52
4.	<b>DISCUSSÃO DE RESULTADOS</b> .....	53
4.1	Obtenção do pó de $U_3O_8$	
4.1.1	Caracterização do pó de TCAU	
4.1.2	Caracterização do pó de $U_3O_8$ calcinado e do sinterizado...55	
4.1.2.1	Determinação do teor de impurezas	
4.1.2.2	Difratometria do pó de $U_3O_8$ sinterizado	
4.1.2.3	Área de Superfície Específica do $U_3O_8$ .....	57
4.1.2.4	Microscopia Eletrônica de Varredura do $U_3O_8$ .....	58

4.1.2.5	Porosimetria de Mercúrio.....	63
4.1.2.6	Rendimentos granulométricos.....	65
4.2	Caracterização da dispersão após laminação.....	68
4.2.1	Radiografia de localização/final do núcleo	
4.2.2	Controle dimensional e densidades hidrostáticas de núcleos.....	69
4.2.3	Distribuições volumétricas de diâmetro de partículas.....	70
<b>5.</b>	<b>CONCLUSÕES.....</b>	<b>80</b>
<b>6.</b>	<b>SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS.....</b>	<b>81</b>
<b>7.</b>	<b>CONSIDERAÇÕES FINAIS.....</b>	<b>82</b>
	<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....</b>	<b>83</b>

## 1. INTRODUÇÃO E OBJETIVO

Dentre os objetivos do IPEN <sup>[2]</sup> na sua atribuição básica de realizar pesquisas científicas e desenvolvimentos tecnológicos na área nuclear em benefício da sociedade brasileira, destacam-se as aplicações da radiação e de radioisótopos na medicina, indústria, agropecuária e meio ambiente. Um esforço polarizado tem sido orientado nesta direção desde praticamente a fundação da Instituição.

No IPEN são produzidos, processados e distribuídos radioisótopos, radiofármacos, substâncias marcadas e outros insumos usados em medicina nuclear que hoje atingem cerca de 360 clínicas, hospitais e universidades em todo Brasil, permitindo o atendimento de aproximadamente 1.000.000 pacientes por ano, número que vem crescendo a taxa superiores a 20% ao ano.

Em 1959, o IPEN iniciou suas atividades de Radiofarmácia, produzindo o iodo-131, destinado ao diagnóstico e terapia da tireóide. Na década de sessenta essas atividades se consolidaram e se ampliaram e diversos radiofármacos foram produzidos, dentre eles o fósforo-32 para tratamento de policetemia vera, o ouro coloidal-198 para estudo da função renal e tratamento de tumores intracavitários, o cromo-51 para marcação de proteínas séricas e o potássio-42 e o sódio-24 para medidas de intercâmbio desses dois elementos no organismo humano. Nessa mesma época, iniciou-se a produção de diversas substâncias marcadas com iodo-131 e cromo-51, utilizadas no diagnóstico de diferentes funções orgânicas. Em 1981, o IPEN iniciou a produção de geradores de tecnécio-99m e conjuntos reativos para serem marcados com esse isótopo. Hoje, esse produto é o mais importante radiofármaco para a medicina nuclear produzido pela Instituição, sendo responsável por cerca de 30% de todos os diagnósticos da medicina nuclear realizados no país.

Em 1987, foi iniciada a produção do gálio-67, o primeiro radiofármaco produzido no IPEN utilizando acelerador ciclotron, usado para diagnósticos de tumores em tecidos moles e em processos inflamatórios. Alguns anos mais tarde, em 1994, iniciou-se a produção de outro radiofármaco de ciclotron, o iodo-123, para diagnóstico da função tireoideana. Em setembro de 1995, com a alteração no esquema operacional do reator nuclear de pesquisas do IPEN, que passou a operar 60 horas contínuas por semana, iniciou-se a produção e a distribuição para todo o país do primeiro radioterápico de segunda geração, o samário-153 ETDMP, usado para alívio das metástases ósseas.

Mais recentemente, no início de 1996, o IPEN começou a preparar e distribuir um novo radiofármaco de ciclotron, o tálio-201, usado para diagnósticos de doenças do coração, inclusive na avaliação de enfartos.

Considerando-se a importância social e estratégica da produção de radiofármacos no país e o contínuo crescimento de dispêndios na importação dos radioisótopos necessários para atender a essa produção, o Governo Federal, através da Secretaria de Assuntos Estratégicos e da Comissão Nacional de Energia Nuclear, decidiu recentemente de maneira incisiva investir nessa área, principalmente no IPEN/CNEN-SP. Como consequência, em 1995 um importante e significativo aporte de recursos financeiros permitiu iniciar reformas substanciais nos laboratórios e na instalação de produção de radiofármacos, assim como no reator nuclear de pesquisas IEA-R1 do IPEN.

Com a conclusão dessas reformas, o aumento da potência do reator para 5 MW, seu funcionamento durante 100 horas contínuas por semana e a instalação de um novo acelerador ciclotron, o IPEN consolida sua capacidade de produzir insumos para medicina nuclear no país e de preparar radiofármacos a partir de radioisótopos produzidos pela própria Instituição.

O processo mais conhecido para obtenção do radioisótopo molibdênio-99, usado para a produção dos geradores de tecnécio-99m, utiliza a irradiação de alvos de urânio altamente enriquecido no isótopo  $^{235}\text{U}$  em reatores nucleares. O molibdênio-99 produzido na irradiação pela fissão do urânio-235, é posteriormente separado através de processos químicos complexos. A decisão de se aumentar a potência do reator IEA-R1 de 2 para 5 MW e de se alterar o ritmo de operação para 100 horas contínuas por semana, criou condições para produção de importante impacto social, a do molibdênio-99, matéria prima para a obtenção do tecnécio-99m. Esses trabalhos vêm sendo desenvolvidos com a colaboração da Agência Internacional de Energia Atômica e do Power Institute of China.

Os aumentos da potência do reator IEA-R1 de 2 para 5 MW, bem como de seu regime operacional necessários à viabilização deste programa, implicaram na necessidade de ampliação da atual capacidade de produção de elementos combustíveis decorrente do aumento do consumo do reator sob estas novas condições operacionais. Durante muitos anos, o IPEN trabalhou no desenvolvimento do processo de fabricação de elementos combustíveis usados internacionalmente em reatores de pesquisas, visando a nacionalização da sua produção para utilização no seu reator IEA-R1. Desde sua inauguração e durante quase três décadas, ao longo de uma época de incertezas quanto ao mercado de materiais nucleares, o reator IEA-R1 dependeu totalmente da importação dos elementos combustíveis necessários para sua operação, fornecidos durante este período pela GENERAL ATOMICS americana (93 % em  $^{235}\text{U}$ ) e NUKEM (20 % em  $^{235}\text{U}$ ) alemã.

A partir de 1985, intensificaram-se os esforços para a produção destes combustíveis no IPEN, iniciando-se a montagem de uma linha de produção com capacidade nominal de 6 elementos combustíveis anuais, produção suficiente para suprir as necessidades do reator IEA-R1, operando a 2MW num regime de 8 horas diárias, 5 dias semanais. Em 1988, a tecnologia de fabricação estava totalmente dominada e a linha de produção pronta para a operação, tendo sido produzido o primeiro elemento combustível para operação regular no caroço do reator IEA-R1.

Em 1990, comprovou-se a capacidade de produção da linha em condições excepcionais, de mais de 1 elemento combustível mensal, tendo sido produzidos 4 elementos combustíveis em 3 meses, devido a uma necessidade urgente do reator IEA-R1. A partir desta data, além de suprir totalmente as necessidades do reator, foi desenvolvida a tecnologia de fabricação do elemento combustível de controle, que possibilitou a substituição com sucesso de 4 elementos anteriormente importados, então já com elevadas taxas de queima. Também iniciaram-se trabalhos visando o desenvolvimento de combustíveis com alta concentração de urânio, mediante aumento da concentração de  $U_3O_8$  por placa combustível. Recentemente, foi comprovada a tecnologia de fabricação pela qualificação do primeiro elemento combustível produzido, por meio de irradiação no reator IEA-R1 até queima média de 36% <sup>[44]</sup>.

A mudança das condições operacionais do reator implicou em um maior consumo de elementos combustíveis, elevando-se para acima de 10 unidades ao ano, tornando inadiável o planejamento do aumento da capacidade de produção da atual linha de fabricação de elementos combustíveis. O atendimento desta nova demanda depende da transferência da atual linha de produção (que apresenta alto índice de dispersão, decorrência de seu caráter laboratorial) para um novo prédio, ampliando-se sua capacidade atual e implantando-se algumas das tecnologias mais avançadas ora em desenvolvimento, não somente para suprir o reator IEA-R1, como também outros futuros reatores produtores de radioisótopos nacionais.

Este contexto determinou a necessidade de implantação de uma nova unidade de produção, designada Centro de Processamento de Combustíveis, planejada para utilizar tanto os pós de  $U_3O_8$  como os de  $U_3Si_2$  <sup>[2]</sup> na fabricação dos elementos combustíveis mencionados anteriormente. Placas combustíveis à base de dispersões de silicetos de urânio em alumínio são capazes de incorporar quantidades de urânio bastante superiores às obtidas com a utilização de  $U_3O_8$ . A utilização do  $U_3Si_2$  possibilita a incorporação de concentrações de urânio de aproximadamente  $5g\ U/cm^3$  contra a concentração máxima de  $3,2gU/cm^3$  relativa ao

emprego do  $U_3O_8$ , como decorrência do limite tecnológico de fabricação do combustível contendo 45% em volume da fase físsil dispersa<sup>[3]</sup>. Após a redução do  $UF_4$  a  $U^0$ , este último sofre adição do silício metálico e, através de fusão em forno a arco ou a indução, é obtido o intermetálico  $U_3Si_2$ . As tabelas 1.1 e 1.2 apresentam as rotas para a produção de  $U_3Si_2$  e de  $U_3O_8$ , respectivamente.

Tabela 1.1 – Rotas para produção do  $U_3Si_2$

Rota do Cloreto Estanoso	Rota da Hidrofluoretação
$UF_6$	$UF_6$
Hidrólise (solução $UO_2F_2$ )	Precipitação do TCAU
Precipitação do $UF_4$ ( $SnCl_2$ )	Redução a $UO_2$ ( $H_2$ )
Redução do $UF_4$ a $U^0$	$UO_2$ a $UF_4$ (HF)
$U_3Si_2$	Redução do $UF_4$ a $U^0$
	$U_3Si_2$

Tabela 1.2 – Rotas para produção do  $U_3O_8$

Rota do DUA	Rota do TCAU
$UF_6$	$UF_6$
Hidrólise (solução $UO_2F_2$ )	Precipitação do TCAU
Precipitação do DUA	Calcinação para $U_3O_8$
Calcinação para $U_3O_8$	

A rota tradicionalmente adotada pelo IPEN para a obtenção do pó de  $U_3O_8$  prevê a hidrólise do  $UF_6$  com posterior precipitação do Diuranato de Amônio (DUA). O IPEN, por intermédio de seu Departamento do Ciclo do Combustível, possui já desenvolvido o processo de produção do  $UO_2$  utilizado em reatores de potência,



tendo produzido o combustível para suprimento do reator IPEN-MB-01 desde o início de sua operação. Este processo prevê a reconversão do  $UF_6$  a Tricarbonato de Amônio e Uranilo (TCAU) e sua posterior redução sob  $H_2$  para a obtenção de pó de  $UO_2$ . Por razões econômicas e estratégicas, o projeto conceitual do Centro de Processamento de Combustíveis <sup>[3]</sup> prevê a utilização do TCAU como matéria prima para a obtenção do  $U_3O_8$  a ser utilizado como composto físsil nos combustíveis tipo MTR, unificando-se as rotas de reconversão do  $UF_6$ , viabilizando-se a obtenção tanto do  $U_3O_8$ , para uso em reatores MTR, como do  $UO_2$ , para uso em reatores PWR, a partir do TCAU.

Tendo em vista o exposto acima, pretende-se verificar a viabilidade técnica da utilização do TCAU como matéria-prima para a obtenção de  $U_3O_8$  com qualidade compatível para seu uso como material físsil no combustível tipo MTR. Esta verificação é realizada com base na caracterização química e física do pó de  $U_3O_8$  obtido e no comportamento da dispersão  $U_3O_8$ -Al preparada a partir deste pó durante o processo de fabricação das placas combustíveis.

## 2 O REATOR IEA-R1m E SEU COMBUSTÍVEL

### 2.1 Descrição do reator IEA-R1m <sup>[52]</sup>

O reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP é um reator nuclear de pesquisas, cuja finalidade é a do estudo de física de reatores, efeitos da radiação em materiais, produção de radioisótopos com aplicação na indústria, medicina e nas pesquisas biológicas, assim como treinamento de pessoal na operação de reatores. Até 1997, operou à potência nominal de 2 MW. A partir de 1998, após sofrer uma série de reformas, sua potência foi elevada para 5 MW, quando então passou a ser chamado de IEA-R1*m* (*m* modificado). Trata-se de um reator térmico, tipo piscina, que utiliza água leve como blindagem, moderador e fluido refrigerante. A figura 2.1 apresenta uma vista do reator e de seu caroço <sup>[4, 5]</sup>.

Reator do tipo piscina, o IEA-R1m possui grande flexibilidade de operação e permite fácil acesso a seu caroço. Sua piscina, revestida de aço inoxidável tipo AISI-304, com capacidade para 272 m<sup>3</sup> e altura de cerca de 10 m, envolve dois compartimentos. No compartimento localizado no centro da piscina, existem tubos colimadores para a obtenção de feixes de nêutrons na parte externa do reator. Nesta posição, a refrigeração é realizada por circulação forçada da água da piscina. Em outro compartimento, está localizada uma coluna térmica, numa das paredes laterais de concreto, usada para experiências com nêutrons térmicos. A coluna térmica é constituída de grafite disposta em blocos para facilitar a formação de gavetas que permitem a irradiação de amostras ou outros tipos de experiências. Existe ainda, a possibilidade de remoção total dos blocos de grafite para a irradiação de grandes volumes. Nesta posição, o reator somente pode ser operado com resfriamento por convecção natural e até a potência de 200 kW. O armazenamento de elementos combustíveis já queimados e de dispositivos de irradiação dá-se no interior da piscina, em compartimento específico para este fim.

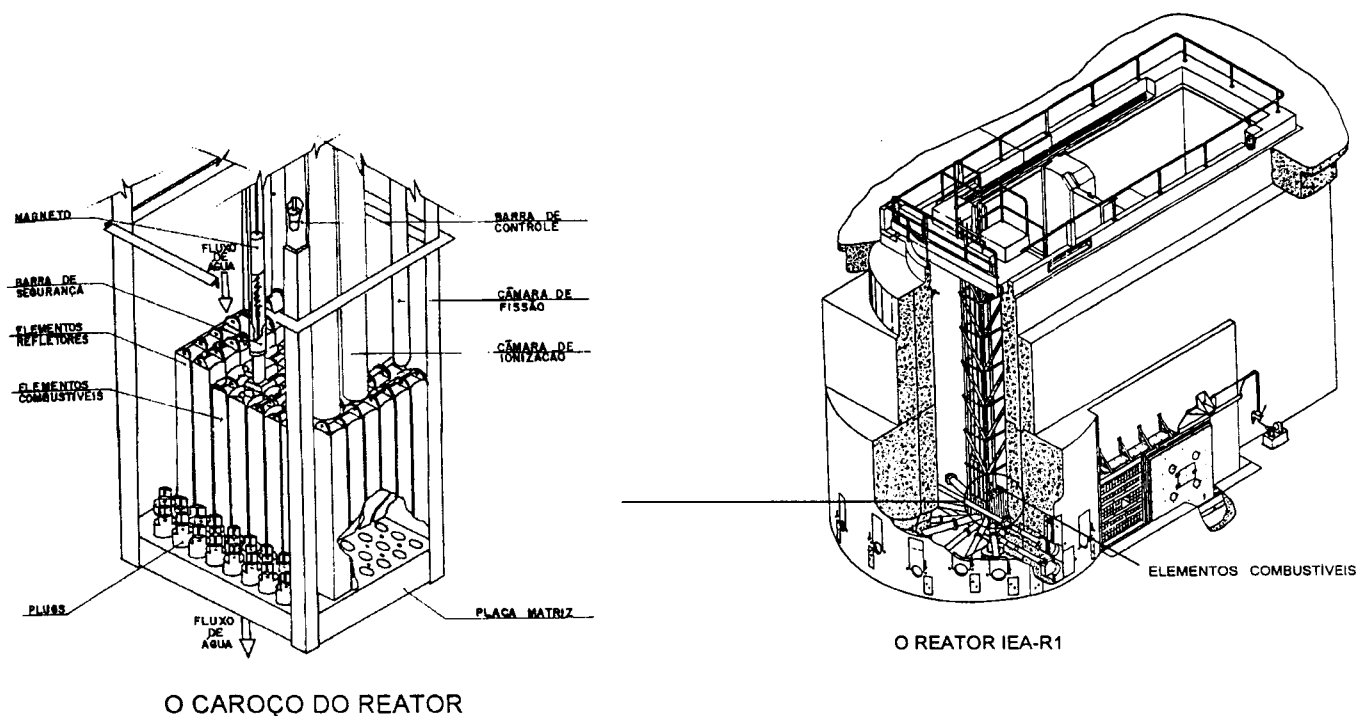


Figura 2.1 – Vistas do reator IEA-R1m e de seu caroço.

Os dois compartimentos podem ser isolados um do outro por uma comporta móvel, possibilitando a movimentação do reator para o compartimento de armazenamento, mantendo-o protegido pela água quando o esvaziamento do compartimento de operação para manutenção ou reformas for necessário.

O caroço do reator é formado por um arranjo cúbico de elementos combustíveis inseridos numa placa matriz, sustentada por uma treliça de alumínio. Esta treliça é fixada em uma plataforma rolante acima da superfície da piscina, podendo ser movimentada ao longo do comprimento da mesma. A placa matriz, de alumínio, possui 80 orifícios (8 x 10) que servem de suporte e fixação para os elementos combustíveis, elementos de controle, refletores e tampões. Ainda na placa matriz, existem 63 orifícios menores, localizados diagonalmente entre os orifícios maiores, que permitem a circulação da água refrigerante por entre as superfícies exteriores dos elementos combustíveis e refletores. Tampões podem fechar os orifícios maiores não usados por elementos combustíveis ou refletores, impedindo

assim uma circulação desnecessária da água. O núcleo do reator é protegido por uma camada de água de cerca de 8 m de altura e, lateralmente, por 1,2 m de água e 2,4 m de concreto de barita.

Na plataforma rolante que movimenta o caroço, estão localizados os mecanismos de acionamento das três barras de controle e da barra de segurança do reator, além das câmaras destinadas à medida do fluxo de nêutrons e outros instrumentos auxiliares.

Os elementos combustíveis do reator IEA-R1m são do tipo MTR, compostos por 18 placas combustíveis planas e paralelas. Estas placas combustíveis são montadas formando um estojo com dimensões em torno de 80 mm x 76,1mm de seção reta e 873,13 mm de comprimento, com 2,9 mm de distância entre as placas e 1,0 mm entre os elementos. Existem ainda, 4 elementos combustíveis de controle, formados por 2 conjuntos de 4 e 5 placas ativas, separadas por um canal destinado a deixar passar a barra de controle ou a barra de segurança. A fenda que possui, substitui aproximadamente a metade das placas combustíveis.

Além dos elementos combustíveis, existem os elementos refletoras que se constituem de blocos de grafite encamisados em alumínio, com 80 mm x 76,1mm X 1067 mm de comprimento. Os elementos de grafite são colocados ao redor do caroço, na placa matriz, permitindo uma grande economia de nêutrons por reflexão dos mesmos, exigindo assim uma massa crítica menor.

O sistema de refrigeração do reator divide-se em dois circuitos - primário e secundário – tendo como função remover a energia térmica gerada por fissões nucleares nos elementos combustíveis, dissipando-a na atmosfera. Isto é realizado pela circulação forçada da água da piscina entre as placas dos elementos combustíveis e nas suas faces laterais, sendo o fluxo de água dirigido do topo para a extremidade inferior do caroço. Por meio da utilização de trocadores de calor e torres de refrigeração, esta energia é dissipada na atmosfera. Quando o reator opera a

potências inferiores a 200 kW, a refrigeração pode ser feita unicamente por convecção natural.

O circuito primário <sup>[6]</sup> é um circuito fechado, responsável pela refrigeração forçada do caroço do reator, estando em contato direto com o mesmo. Neste circuito, a água é succionada pelas bombas hidráulicas através dos elementos combustíveis e da placa matriz, passando por um tanque de decaimento e pelos trocadores de calor, retornando à piscina de maneira homogênea através de um difusor.

A vazão global do circuito primário de refrigeração é aproximadamente igual a 1300 m<sup>3</sup>/h, mantida por duas bombas. Entre as bombas e o motor, existe um volante de inércia para manter um suficiente resfriamento do caroço durante a parada das mesmas após um eventual desligamento de emergência do reator, permitindo a dissipação da energia residual existente.

O funil de circulação liga a placa matriz à válvula de convecção, estando situado abaixo da placa matriz. Quando a válvula está desacoplada, a refrigeração é feita por convecção natural e, quando acoplada, através de circulação forçada.

O tanque de decaimento tem por finalidade reter a água que sai do caroço do reator durante um tempo suficiente para o decaimento do <sup>16</sup>N. Os trocadores de calor são responsáveis pela transferência da energia térmica do circuito primário para o circuito secundário durante a refrigeração do caroço.

O circuito secundário é composto por dois sistemas independentes, mas que podem ser interligados. A função deste circuito é remover a energia térmica do circuito primário, através dos trocadores de calor, liberando-a na atmosfera por meio das torres de refrigeração. O circuito secundário possui duas bombas com uma vazão global de 1030 m<sup>3</sup>/h, que atravessa os trocadores de calor e entra nas torres de refrigeração, cada qual com dois ventiladores.

O sistema de tratamento de água é responsável pelo abastecimento da água da piscina, completando o seu nível quando necessário para compensar perdas por evaporação superficial e por vazamentos nas bombas hidráulicas do circuito primário. Este sistema recebe a água proveniente da rede normal de abastecimento da cidade. A água é filtrada para retenção de partículas sólidas em suspensão e, em seguida, tratada por meio de resina trocadora de íons catiônicos, sendo retirados o cálcio e o magnésio. Após este tratamento, a água é novamente filtrada com carvão ativado e tratada por meio de dois trocadores de íons do leito misto, permanecendo um deles em reserva, sendo utilizado quando o outro necessitar de regeneração de suas resinas. A água desmineralizada proveniente deste sistema é fornecida à piscina com resistividade de  $1,0 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ . A regeneração das resinas é realizada quando a resistividade for inferior a  $0,5 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ .

O sistema de retratamento da água é responsável pelo tratamento contínuo da água da piscina, sendo constituído por duas unidades, com cada uma delas com um filtro de carvão ativado e um trocador de íons de leito misto. Uma das unidades é mantida em reserva, entrando em funcionamento quando for necessário regenerar as resinas da unidade em uso. A regeneração das resinas do sistema de retratamento é realizada quando a resistividade da água que retorna à piscina encontra-se abaixo de  $0,5 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ . Desta forma, a resistividade é mantida entre  $0,5 \times 10^6$  e  $1,0 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ .

As informações relativas ao fluxo de nêutrons e à reação em cadeia, são enviadas ao operador por detetores instalados no caroço do reator. Além do sistema de controle, existe uma série de instrumentos auxiliares que permitem a centralização de todas as informações necessárias às condições de operação e segurança do reator em sua cabine de controle, situada próxima à piscina. O painel de controle fornece informações sobre temperaturas em vários pontos dos circuitos de refrigeração e da piscina, vazões nos circuitos de refrigeração e níveis de radiação em vários pontos do reator. Existem ainda na cabine de controle, alarmes

contra níveis excessivos de radiação, mau funcionamento de bombas, temperaturas anormais, dentre outros.

O sistema de segurança do reator atua sobre magnetos que sustentam as barras de segurança. Qualquer situação anormal nas condições de operação do mesmo, desativa estes magnetos, provocando a queda por gravidade das barras de segurança, que são inseridas nos elementos combustíveis de controle. Deste modo, reduz-se drasticamente a reatividade do reator, o que acarreta em seu desligamento ("scram").

## 2.2 O combustível tipo MTR

### 2.2.1 Um breve histórico

Como consequência do empreendimento conjunto entre o ORNL (Oak Ridge National Laboratory) e o ANL (Argonne National Laboratory), foi construído o primeiro reator de pesquisas moderado e refrigerado a água leve, que utilizava elementos combustíveis tipo placa. Este reator iniciou suas operações em 31 de março de 1952. A partir desta data, reatores similares têm sido denominados *reatores tipo MTR*. (Materials Testing Reactor). Numerosos reatores de pesquisa em todo o mundo utilizam elementos combustíveis tipo MTR, constituídos por placas combustíveis fabricadas de acordo com a técnica de montagem *núcleo* - (contendo o material físsil) – *moldura* - *revestimentos* e com posterior deformação por laminação ("picture frame technique") [7, 8].

Inicialmente, este tipo de combustível utilizava como material do núcleo as ligas de urânio-alumínio contendo 18 % em peso de urânio altamente enriquecido (93 % em peso de  $^{235}\text{U}$ ) [7,9]. Ainda na década de 50 [10], tendo em vista a preocupação com a não proliferação de armamentos nucleares, começaram a ser utilizados combustíveis contendo urânio com baixo enriquecimento (20 % em peso de  $^{235}\text{U}$ ) em reatores de pesquisas de baixas potências. Com a redução do enriquecimento, para

que não fosse diminuída a reatividade e a vida útil dos caroços dos reatores, tornou-se necessário o aumento da quantidade de urânio em cada placa combustível.

Placas combustíveis contendo núcleos à base da liga U-Al com 18 % em peso de urânio altamente enriquecido eram facilmente fabricadas. Entretanto, surgiram dificuldades na fabricação de placas combustíveis com núcleos de liga U-Al contendo 45 % em peso de urânio com baixo enriquecimento, devidas à fragilidade e propensão à segregação desta liga <sup>[10,11,12]</sup>. Uma alternativa para contornar-se este problema foi a utilização de núcleos fabricados por metalurgia do pó, que utilizavam dispersões de compostos de urânio em alumínio e podiam incorporar quantidades de urânio com baixo enriquecimento sensivelmente maiores. Em 1956 tinha início a operação do reator Argonauta (10 MW), desenvolvido pelo ANL, que utilizou placas combustíveis com núcleos à base da dispersão U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al contendo 39 % em peso de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> com baixo enriquecimento <sup>[13]</sup>. Esforços foram realizados no sentido de aumentar-se a concentração de urânio neste tipo de dispersão, obtendo-se até o final da década de 70 um máximo de 65 % em peso de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> no combustível para o *Puerto Rico Research Reator* do Puerto Rico Nuclear Center <sup>[14]</sup>.

Com o desenvolvimento de reatores de pesquisas de potências mais elevadas para obtenção de altos fluxos de nêutrons, foi necessária a continuação da produção de combustíveis que utilizavam urânio altamente enriquecido (93 % em peso de <sup>235</sup>U), obtendo-se maior reatividade específica e economia, uma vez que estes combustíveis podiam permanecer mais tempo no núcleo do reator (maior vida útil). O HFIR <sup>[15]</sup> (High Flux Isotope Reactor), com potência de 100 MW, utilizava dispersão U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al com 40 % em peso de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> e o ATR <sup>[16]</sup> (Advanced Test Reactor), com 250 MW, utilizava o mesmo tipo de dispersão com 34 % em peso de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>. Além das dispersões U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al, eram comumente utilizadas as dispersões UAl<sub>x</sub>-Al (com x aproximadamente igual a 3) e as ligas U-Al, todos os sistemas utilizando urânio altamente enriquecido. Nesta época, no fim da década de 70, a máxima densidade de urânio obtida qualificada foi de 1,7 gU/cm<sup>3</sup>.



Desde que na década de 70 o urânio altamente enriquecido era de fácil obtenção comercial, mesmo os reatores que utilizavam urânio com baixo enriquecimento foram gradualmente convertendo seus núcleos para utilizar combustíveis altamente enriquecidos. Assim, chegou-se a um total de aproximadamente 156 reatores de pesquisa em 34 países utilizando urânio altamente enriquecido, resultando numa circulação anual de aproximadamente 5000 kg deste material <sup>[17]</sup>. Em 1977 ressurgiu a preocupação com o risco de proliferação nuclear associada ao extravio deste combustível durante a fabricação, transporte e armazenamento, resultando na restrição pelo governo americano da comercialização de urânio com alto grau de enriquecimento (acima de 90 % em peso de <sup>235</sup>U), produzindo um impacto na disponibilidade e utilização deste combustível para reatores de pesquisas.

A partir de 1978, o Departamento de Energia Americano iniciou a promoção do programa internacional RERTR (Reduced Enrichment Research and Test Reactors) que visava o desenvolvimento de novos combustíveis para a substituição nos reatores de pesquisa do urânio altamente enriquecido (HEU) por urânio com baixo enriquecimento (LEU), abaixo de 20 % em peso de <sup>235</sup>U. Isto implicou num esforço muito maior do que o verificado até então, pois os reatores de maior potência e projetados para operar em condições limites exigiram desenvolvimento e qualificação de combustíveis com a máxima concentração de urânio possível, dentro de limites impostos pela fabricabilidade e desempenho sob irradiação severa e prolongada.

Neste contexto, os desenvolvimentos basearam-se na elevação da concentração de urânio dos combustíveis até o limite prático de 2,3 gU/cm<sup>3</sup> para o UAl<sub>x</sub>-Al e de 3,2 gU/cm<sup>3</sup> para o U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al, bem como na obtenção de novos combustíveis que permitissem a obtenção da máxima densidade de urânio possível utilizando-se as ligas UAl<sub>x</sub>-Al e U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al. O desenvolvimento destes novos combustíveis possibilitariam a conversão para baixo enriquecimento de praticamente todos os reatores de pesquisa existentes.

Altas densidades de urânio na dispersão somente podem ser conseguidas através da utilização de compostos físsis com alto teor de urânio. A figura 2.2 apresenta o potencial de vários desses compostos. Considerando-se o limite tecnológico para utilização da técnica de laminação de 45 % em volume para o material físsil disperso, pode-se observar que os silicetos de urânio e o  $U_6Fe$  são compostos promissores. Placas combustíveis à base de dispersões de intermetálicos de urânio em alumínio podem incorporar quantidades de urânio bastante superiores às obtidas com a utilização de  $U_3O_8$ . A utilização do  $U_3Si_2$ , do  $U_3Si$  e do  $U_6Fe$  possibilitam a incorporação de concentrações de urânio aproximadas de 5, 7 e 8  $gU/cm^3$ , respectivamente, contra a concentração máxima de 3,2  $gU/cm^3$  obtida com a utilização do  $U_3O_8$ , considerando-se o limite tecnológico de 45 % em volume da fase físsil dispersa acima mencionado.

O problema encontrado na utilização destes intermetálicos, com alto teor de urânio como material físsil na forma de dispersões em alumínio formando o núcleo das placas combustíveis, está relacionado à sua instabilidade dimensional durante a operação, conduzindo a um inchamento das placas combustíveis e, por conseguinte, a problemas termohidráulicos que comprometem a segurança do reator. Em meados de 1988, com base em resultados de testes de irradiação <sup>[18,19]</sup>, o combustível à base da dispersão  $U_3Si_2-Al$  foi qualificado pelo US Nuclear Regulatory Commission e liberado para comercialização para concentrações de urânio de até 4,8  $gU/cm^3$ , apresentando um inchamento compatível com o observado no caso das dispersões até então utilizadas <sup>[20]</sup>.

Pesquisas visando a utilização de intermetálicos como material físsil na forma de dispersões em alumínio com ainda maiores concentrações de urânio, tais como o  $U_3Si$ ,  $U_3SiAl$  e  $U_6Fe$ , continuaram a ser empreendidas. O  $U_6Fe$  <sup>[21]</sup>, devido à sua alta concentração de urânio (96 % em peso) foi particularmente considerado. Porém, devido ao alto inchamento observado em testes de irradiação destes novos combustíveis, as pesquisas foram praticamente abandonadas a partir de 1986, fato reiterado também pelos resultados promissores obtidos com a dispersão  $U_3Si_2-Al$ . A

partir desse instante, o emprego destes novos materiais foi considerado inviável <sup>[22]</sup>, pois resultados de testes de irradiação demonstraram sua inaceitável instabilidade dimensional. Apenas por meio da utilização do  $U_3Si_2$  como material físsil nas dispersões em alumínio, não foi possível a conversão de todos os reatores de pesquisa e os reatores de alto desempenho ainda dependiam de uma solução tecnológica definitiva, voltada ao emprego de uma concentração de urânio de 6 a 9  $gU/cm^3$ . Num esforço para a conversão destes reatores, outros combustíveis de alta densidade têm sido estudados, incluindo-se dispersões à base de  $U_3SiCu$ ,  $U_3Si_{1,5}$ ,  $U_3Si_{1,6}$ ,  $U_{75}Ga_{15}Ge_{10}$ ,  $U_{75}Ga_{10}Si_{15}$  e nitretos de urânio. Adicionalmente, inovadoras técnicas de fabricação têm sido investigadas, baseadas em compactação isostática a quente (HIP - Hot Isostatic Pressing), seja aumentando-se a fração volumétrica do  $U_3Si_2$  para além de 50% (o limite tecnológico aceito atualmente é de 45%), ou utilizando-se arames de  $U_3Si$  e/ou  $U_{75}Ga_{10}Si_{15}$  e/ou  $U_{75}Ga_{15}Ge_{10}$  caldeados em alumínio, numa geometria tal que gere placas com densidades próximas a 9  $gU/cm^3$  no núcleo combustível.

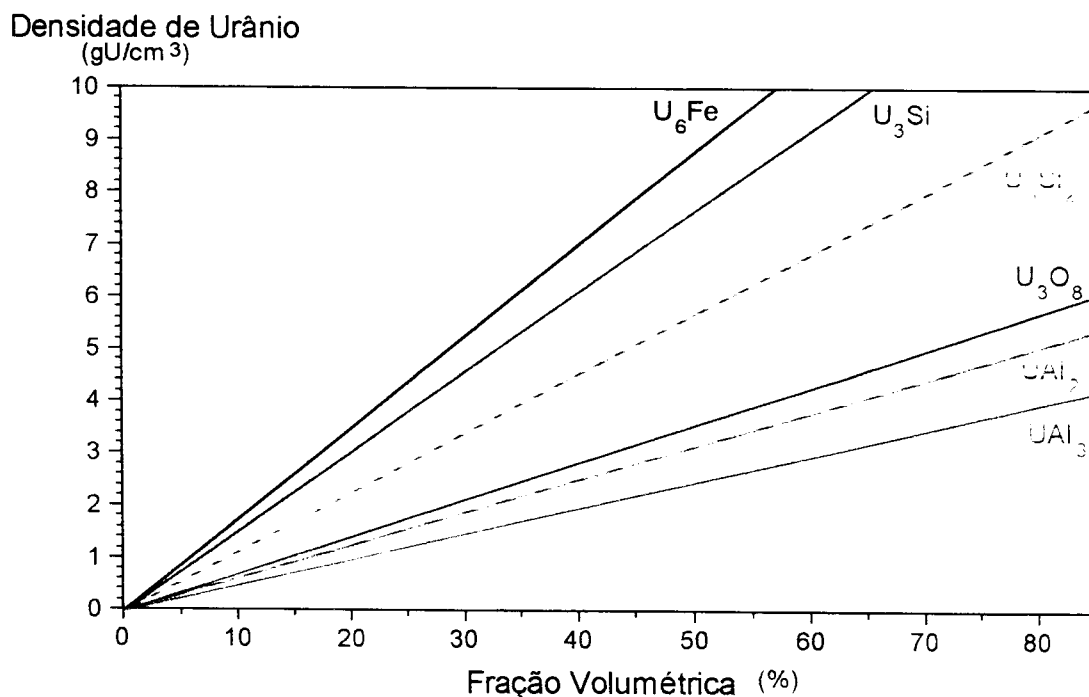


Figura 2.2 - Densidade de urânio na dispersão em função da concentração da fase físsil dispersa para diferentes compostos de urânio.

Estudos de compatibilidade entre silicetos de urânio e alumínio <sup>[23,24]</sup>, dispostos na forma de dispersão, detectaram um inchamento decorrente da reação entre os dois componentes. Esta incompatibilidade química está relacionada à instabilidade dimensional observada nos testes de irradiação. O mecanismo proposto para explicar este comportamento está baseado na formação de produtos de reação de menor densidade e de poros produzidos pelo efeito "Kirkendall". Segundo este mecanismo, o alumínio da matriz da dispersão difunde-se preferencialmente pelos contornos de grão para o interior das partículas de siliceto, formando compostos  $U(Al,Si)_x$  de menor densidade e porosidade. Por analogia, o problema de inchamento observado nos outros sistemas de alta densidade de urânio em testes de irradiação, deve estar também relacionado à reação do composto físsil com a matriz de alumínio da dispersão, segundo um mecanismo similar ao proposto no caso dos silicetos de urânio.

### **2.2.2 O uso de cermets $U_3O_8$ -Al e o comportamento da dispersão sob irradiação**

Cermets nucleares <sup>[50]</sup> são materiais compostos pela conjugação de ao menos dois materiais com propriedades diversas e com funções distintas a desempenhar no combustível, de modo que possuam determinadas características específicas ao desempenho de suas funções. Devem ainda ser materiais compatíveis, sem que ocorram reações químicas ou metalúrgicas entre si quando postos em contacto, por maiores que sejam as temperaturas de fabricação ou de irradiação. Devem também resistir às interações decorrentes da irradiação, que irão impor os limites de queima para um determinado combustível. Porém, a incompatibilidade é admitida, desde que durante a operação normal do combustível não sejam atingidas temperaturas acima das quais a incompatibilidade se manifeste e, além disto, caso estas temperaturas sejam eventual e acidentalmente atingidas, o fato não seja agravado por interações subseqüentes <sup>[51]</sup>.

Um cermet  $U_3O_8$ -Al <sup>[52]</sup> é uma dispersão uniforme de partículas de  $U_3O_8$  numa matriz metálica de alumínio. As características frágeis e não plásticas do  $U_3O_8$  são compensadas pela matriz contínua de alumínio e a estrutura formada adquire a plasticidade necessária ao processo de fabricação de placas combustíveis.

A alta concentração de urânio e a boa estabilidade sob irradiação tornam o  $U_3O_8$  propício à utilização como combustível nuclear. Certas características do alumínio, tais como a baixa seção de choque de absorção de nêutrons térmicos, a facilidade de ser trabalhado por métodos de metalurgia do pó, a disponibilidade e o custo relativamente baixo, tornam adequada a sua utilização como material de matriz. O alumínio possui ainda, propriedades mecânicas adequadas para suportar as solicitações mecânicas provenientes de:

- tensões térmicas associadas aos gradientes de temperatura;
- tensões criadas ao redor das partículas dispersas, devidas ao aumento do seu volume pela acúmulo de produtos de fissão durante a irradiação;
- tensões associadas a variações na taxa de expansão térmica dos vários componentes do elemento combustível;
- tensões causadas por distorções nos componentes do núcleo do reator;
- vibrações causadas pelas flutuações do fluxo de refrigerante.

Além disso, o alumínio possui condutividade térmica alta o suficiente para conferir ao cermet  $U_3O_8$ -Al uma condutividade térmica adequada para sua aplicação na maioria dos reatores de pesquisa, mesmo para concentrações de  $U_3O_8$  no cermet até 82,5% em peso <sup>[25]</sup>.

Em meados da década de 60, estudos sobre o comportamento pós-irradiação de dispersões contendo 65% em peso de ( $U_3O_8$  enriquecido a 20%) em alumínio foram iniciados no Laboratório Nacional de Oak Ridge <sup>[53]</sup>. Ensaios foram

efetuados em mini-placas e em um elemento combustível completo, a fim de ser avaliada a estabilidade sob irradiação deste tipo de dispersão. O elemento combustível foi irradiado por 6 meses no núcleo ativo do reator de pesquisa de Oak Ridge (ORR), com taxa de queima de 50%. As dispersões de  $U_3O_8$ -Al apresentaram desempenho bastante satisfatório até densidades de fissão da ordem de 1,5 a  $2,4 \times 10^{21}$  fissões/cm<sup>3</sup> em temperaturas entre 60 e 120°C [27]. Testes pós-irradiação não indicaram defeitos estruturais como empolamento ou falhas entre o núcleo e o revestimento ou trincas na matriz.

Até 1977, respectivamente 25.308 e 54.612 placas combustíveis utilizando núcleos de cermetes  $U_3O_8$ -Al contendo 30,2 e 40,1% em peso de  $U_3O_8$  foram consumidas pela HFIR. O desempenho destas placas combustíveis, sob condições térmicas e hidráulicas muito mais severas do que aquelas encontradas na maioria dos reatores de pesquisa, foi altamente satisfatório. O HFIR opera com uma densidade média de fissões de  $5,3 \times 10^{20}$  fissões/cm<sup>3</sup> (com pico de  $1,9 \times 10^{21}$ ) e temperaturas da ordem de 114 a 330°C [26].

Os pós de  $U_3O_8$  e de alumínio, dispostos na forma de cermetes, reagem entre si com liberação de calor, num Processo conhecido como reação termita. Os produtos desta reação, observados por Fleming e Johnson [28] por difratometria de Raios-X, foram identificados como sendo  $UO_2$ , *compostos intermetálicos de urânio-alumínio* e  $Al_2O_3$ . Foi observado que a reação termita iniciava-se após a mistura Ter atingido a temperatura de 649°C, ocorrendo em alguns casos, reações violentas, com temperaturas atingindo 2200°C. Além disto, foi constatado que entre 55% a 75% em peso de  $U_3O_8$ , ocorriam as maiores liberações de energia.

Em princípio, os resultados mostraram-se reticentes à utilização dos cermetes de  $U_3O_8$ -Al como combustíveis nucleares, já que a reação termita poderia resultar em acidentes com perda de refrigerante (LOCA – “Loss of Coolant Accident”), acarretando em fusão do combustível. Contudo, simulações das condições reais de acidente no HFIR realizadas no TREAT [29] (Transient Reactor Test Facility)

demonstraram que, em combustíveis com 41% em peso de  $U_3O_8$ , a reação termita não é uma fonte significativa de calor. Além disto, Pasto, Copeland e Martin <sup>[30]</sup> verificaram para a mesma faixa de concentrações de  $U_3O_8$ , liberações de calor muito menores do que as observadas por Fleming e Johnson, sendo geralmente pequenas quando comparadas à energia necessária para iniciar-se a reação. A reação termita, portanto, não inviabilizou a utilização dos cermetes de  $U_3O_8$ -Al como combustíveis nucleares, mesmo aqueles com altas concentrações de  $U_3O_8$ .

Uma avaliação das propriedades de fragmentação e alinhamento ("stringering") do  $U_3O_8$  disperso em alumínio, baseada em critérios como densidade da partícula de  $U_3O_8$ , área de superfície específica e procedimentos de fabricação, permitiriam que se previsse o comportamento das dispersões  $U_3O_8$ -Al sob irradiação<sup>[54]</sup>. Segundo este estudo, um elevado grau de alinhamento das partículas físséis dispersas, fragmentadas durante a laminação da placa combustível, seria prejudicial ao desempenho do combustível sob irradiação, conseqüência de:

- Aumento da superfície específica do óxido, ocasionando maior reatividade do mesmo.
- Textura fibrosa da dispersão laminada, resultando em anisotropia do núcleo.
- Segregação da fase cerâmica, resultando em heterogeneidade na distribuição da fase físsil.

A estabilidade sob irradiação apresentada pelas dispersões  $U_3O_8$ -Al foi verificada quando os produtos de fissão ou se acumulavam no interior das partículas combustíveis, ou então nas vizinhanças das mesmas, desde que não houvesse superposição ou contacto entre tais vizinhanças (regiões danificadas da matriz de alumínio). A distância entre as partículas físséis para que isto ocorresse, mostrou-se dependente do *tamanho* dessas partículas e da *fração volumétrica* por elas ocupada

na dispersão. Esta distância mostrou-se tanto maior quanto maior o tamanho de partículas e quanto menor sua concentração em volume na dispersão.

Foram também comprovados os seguintes aspectos com relação às dispersões  $U_3O_8$ -Al <sup>[52]</sup> :

- O inchamento sob irradiação é principalmente uma função da densidade de fissão e da quantidade inicial de vazios na dispersão antes da irradiação.
- Como a quantidade de vazios aumenta com o aumento da fração volumétrica das partículas físeis, placas combustíveis com maiores carregamentos de  $U_3O_8$  tendem a inchar menos quando irradiadas de maneira análoga.
- O inchamento induzido pela irradiação é independente da fração volumétrica de partículas combustíveis menores que  $44 \mu\text{m}$ .

Com relação à influência do percentual de finos de  $U_3O_8$  (partículas menores que  $44 \mu\text{m}$  presentes nas dispersões de  $U_3O_8$ -Al) sobre a estabilidade sob irradiação do combustível <sup>[43]</sup>, pode-se dizer teoricamente que, existe um tamanho mínimo de partículas físeis para uma determinada fração volumétrica, abaixo do qual ocorre a descontinuidade da matriz não danificada. Assim, quanto menor o tamanho de partícula, tanto menor será o percentual dos produtos de fissão retido em seu interior, ocasionando maiores danos à matriz de alumínio.



### 2.2.3 O processo de fabricação do combustível tipo MTR <sup>[52]</sup>

Elementos combustíveis tipo MTR são aqueles constituídos por um conjunto de placas combustíveis espaçadas entre si, por entre as quais ocorre a passagem de um fluxo de água que atua como refrigerante e moderador. O perfeito desempenho do reator durante sua vida útil bem como de seus componentes, é assegurado obedecendo-se às seguintes recomendações:

- a composição da quantidade de combustível no caroço deve ser controlada rigidamente. Excessos de combustível resultam em maiores reatividades do caroço, com sério risco de acidente nuclear; um erro na direção oposta reduz sua vida útil.
- a distribuição do combustível no núcleo da placa deve ser uniforme, evitando-se aquecimentos localizados;
- a ligação metalúrgica entre revestimento, moldura e matriz do núcleo da placa combustível deve ser contínua, de modo a proteger-se o núcleo da corrosão proveniente de seu contacto com o refrigerante e evitar-se a liberação de produtos de fissão.
- a uniformidade na espessura do núcleo e do revestimento deve ser mantida para que se assegure a proteção contra corrosão e a necessária concentração uniforme do combustível em toda área ativa da placa;
- o controle da composição e do processamento de materiais deve ser rigoroso, a fim de minimizar a presença de contaminantes que, além de acelerar a corrosão, contribuem para a absorção parasítica de nêutrons e aumentam o nível de radioatividade da água da piscina do reator.

São utilizadas técnicas de metalurgia do pó na fabricação dos núcleos de placas combustíveis que utilizam cermet  $U_3O_8-Al$ . Os materiais de partida são o pó de alumínio (material da matriz) e o pó de  $U_3O_8$  enriquecido (material combustível). A

figura 2.3 apresenta um diagrama do processo de fabricação de elementos combustíveis tipo MTR. A quantidade de mistura necessária para cada núcleo após pesagem e mistura dos pós é carregada numa matriz e compactada hidraulicamente a frio. Os compactados são desgaseificados para remoção de lubrificantes e de gases adsorvidos. Cada núcleo obtido é montado numa moldura de alumínio juntamente com duas placas de revestimento, como ilustrado na figura 2.4. São soldadas lateralmente as placas de revestimento e de moldura, a fim de evitar-se o deslocamento dos componentes do conjunto durante as operações iniciais de laminação. As quatro bordas não são soldadas em toda sua extensão, permitindo-se o escape de ar durante o estágio inicial da laminação. Os conjuntos são laminados a quente após a soldagem, promovendo-se a ligação metalúrgica de núcleo, moldura e de placas de revestimento. A ligação metalúrgica ocorre por difusão, resultado do aquecimento, pressão e deformação pela laminação. Um tratamento de limpeza nas superfícies das placas de moldura e de revestimento antes da montagem do conjunto é necessário, devendo estas superfícies permanecer limpas até a etapa de laminação. Antes do primeiro passe, o conjunto deve ser aquecido a 580°C por pelo menos 60 minutos e aquecido entre passes por no mínimo 5 minutos. Após a laminação a quente, as placas são aquecidas por 60 minutos a uma temperatura de 500°C e resfriadas ao ar, a fim de aliviar as tensões criadas nos últimos passes da laminação a quente e verificar a existência de bolhas causadas por eventuais falhas na ligação metalúrgica entre o núcleo e a moldura com o revestimento (ensaio de empolamento). As placas são a seguir laminadas a frio para atingirem a espessura final estabelecida com precisão. As placas que não estejam suficientemente planas após a laminação a frio, devem ser endireitadas para atingirem elevado grau de aplainamento. Normalmente, isto é realizado em aplainador de rolos em dois passes. As placas obtidas são radiografadas para localização exata do seu núcleo combustível e cortadas nas dimensões requeridas. Através de radiografias, são verificadas a homogeneidade da distribuição de  $U_3O_8$  e a existência de trincas internas ou de defeitos terminais no núcleo. Em seguida, as placas combustíveis são limpas por meio de decapagem alcalina e lavadas com água desmineralizada, estando prontas para a montagem final do elemento combustível.

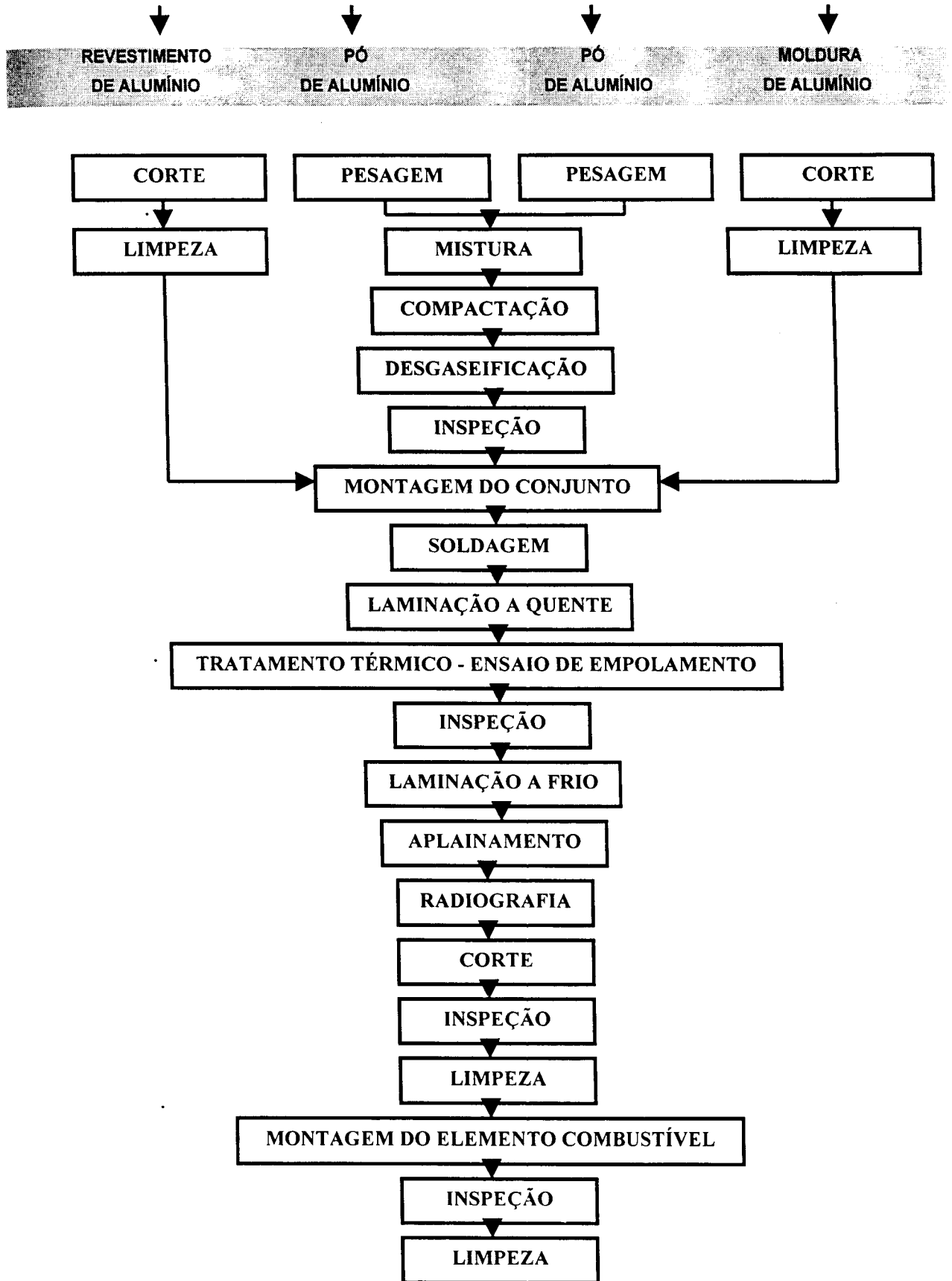


Figura 2.3 – Diagrama esquemático do processo de fabricação de elementos combustíveis tipo MTR.

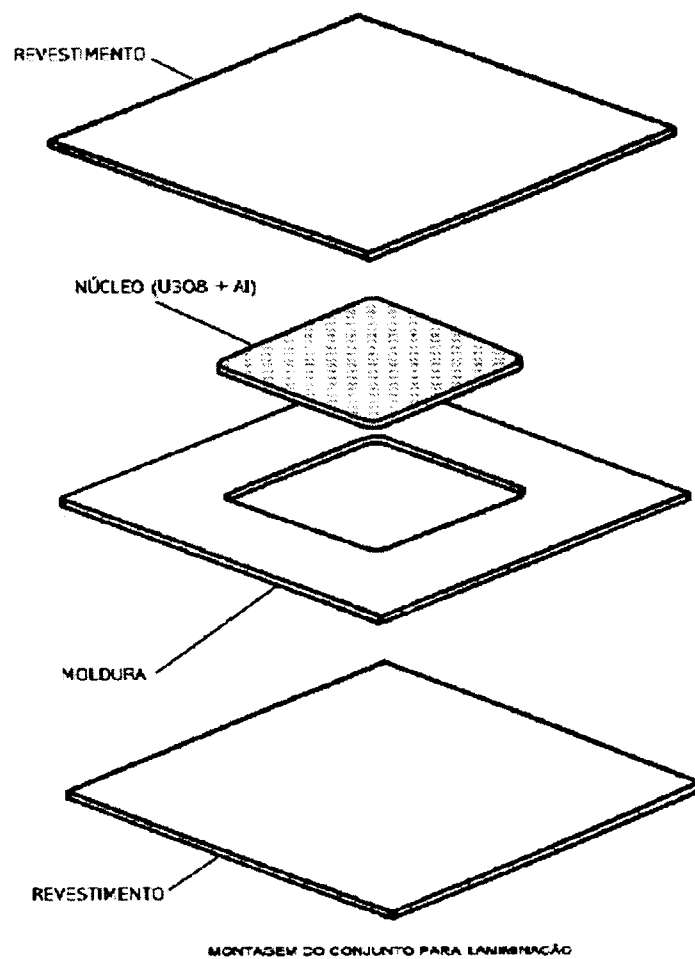


Figura 2.4 - Esquema de montagem do conjunto a ser laminado.

A montagem das placas que constituem o elemento combustível é realizada por fixação mecânica em dois suportes laterais providos de dentes. O espaçamento entre as placas deve ser mantido dentro de rígidas tolerâncias. Os procedimentos de fabricação de elementos combustíveis tipo placa para alguns tipos de reatores estão disponíveis na literatura [15, 16, 31, 32]. O combustível do reator IEA-R1m é formado por um conjunto de 18 placas combustíveis, dispostas paralelamente em suportes laterais, onde são fixadas. O caroço do reator é formado por 25 a 30 desses elementos, dependendo da configuração adotada. O material combustível

propriamente dito, está contido no interior de cada uma das placas, de modo a não ter contato com a água que é utilizada como refrigerante do caroço, como descrito anteriormente. O material combustível adotado é o  $U_3O_8$ , um dos vários óxidos do urânio. A figura 2.5 apresenta a ilustração de um elemento combustível fabricado no IPEN.



Figura 2.5 – Elemento combustível do reator IEA-R1 fabricado no IPEN.

#### 2.2.4 Os processos de obtenção do pó de $U_3O_8$

Uma completa revisão dos métodos de obtenção de  $U_3O_8$  até 1988 foi feita por Leal Neto <sup>[43]</sup>. Desde meados de 1988, com a qualificação dos combustíveis à base de dispersões de  $U_3Si_2-Al$  com até  $4,8 \text{ gU/cm}^3$  <sup>[20]</sup> e com o início de sua comercialização internacional, perdeu-se inequivocamente o interesse pelo desenvolvimento de novos métodos obtenção de  $U_3O_8$ .

Os processos de obtenção do pó de  $U_3O_8$  adequado ao emprego em combustíveis do tipo MTR são pouco descritos na literatura. Têm-se dados bem detalhados dos procedimentos utilizados nos Estados Unidos e na Argentina e algumas informações dos processos empregados na Alemanha Ocidental. Os parâmetros operacionais de reatores tipo MTR como o IEA-R1, exigem

características físicas e químicas muito bem definidas do pó de  $U_3O_8$  utilizado nas placas combustíveis, que deve satisfazer a alguns requisitos como:

- concentração de impurezas abaixo de limites máximos permissíveis <sup>[31]</sup>.
- densidade superior a  $8,0g/cm^3$  <sup>[31,45]</sup>.
- área de superfície inferior a  $0,1m^2/g$  <sup>[31,45]</sup>.
- tamanho de partícula entre 44 e 88  $\mu m$  <sup>[31,43]</sup>.
- elevada resistência à compressão <sup>[31,43]</sup>.
- morfologia das partículas adequada à perfeita homogeneização dos pós.

Partículas pouco densas e angulosas produzem durante a laminação uma estrutura texturada; partículas maiores que  $88\mu m$  podem originar "hot points", regiões localizadas com alto teor de urânio; partículas menores que  $44\mu m$  comprometem requisitos de estabilidade à irradiação; alguns autores avalizam o uso de um teor de finos aproximadamente igual a 25% em peso <sup>[46]</sup>. Outros autores admitem um teor de finos em torno de 50 % em peso <sup>[48]</sup>. Estes requisitos impostos ao pó de  $U_3O_8$  procuram prever o efeito de sua fragmentação após as etapas de compactação do briquete e de laminação da placa combustível. Porém, não existem na literatura especificações para partículas físseis como as encontradas nas placas laminadas.

Desde o início de operação do reator Argonauta e ao longo dos anos, os métodos de obtenção de  $U_3O_8$  foram sensivelmente modificados. No caso do reator Argonauta, a descrição do processo encontrada na literatura é bastante superficial <sup>[33]</sup>. O pó de  $U_3O_8$  possuía coloração preta, era isento de materiais voláteis até  $1000\text{ }^\circ C$ , com distribuição granulométrica inferior a 100 mesh. Outros trabalhos desenvolvidos na ISNSE (International School of Nuclear Science and Engineering) <sup>[34]</sup>, descrevem o condicionamento do  $U_3O_8$ , que era tratado ao ar a  $1000\text{ }^\circ C$  por 4 horas e moído por 12 horas. O pó de  $U_3O_8$  resultante apresentava distribuição granulométrica inferior a 80 mesh.

Na Argentina e no Brasil, o  $U_3O_8$  utilizado na fabricação de elementos combustíveis era similar ao utilizado pelo reator Argonauta sendo importado dos EUA. Esses países, no entanto, também processavam o  $U_3O_8$  natural necessário às etapas de desenvolvimento. Na Argentina<sup>[35]</sup>, o  $U_3O_8$  era obtido por calcinação ao ar (900 °C - 2 horas) do  $UO_3$  hidratado, previamente moído a 70 mesh. No Brasil<sup>[36]</sup>, o  $U_3O_8$  era proveniente do diuranato de amônio calcinado ao ar (875 °C - 2 horas). A faixa granulométrica utilizada era inferior a 325 mesh.

O desenvolvimento de reatores de pesquisa e teste de materiais de maiores performances alterou sensivelmente o processamento do  $U_3O_8$ . Além da calcinação, introduziu-se a etapa de sinterização, como recurso para se obter um óxido de alta densidade e baixa área de superfície específica. O processo de obtenção de  $U_3O_8$  desenvolvido na planta Y-12 da " Union Carbide Nuclear Company " – EUA - é descrito minuciosamente pela literatura<sup>[14, 37]</sup>. O pó produzido naquela unidade foi utilizado tanto em reatores de baixa potência, como o reator PRNC (5 MW e fluxo de  $5,2 \times 10^{12}$  nêutrons/cm<sup>2</sup>.s a 1 MW)<sup>[14]</sup>, como em reatores de alta potência, como o ATR (250 MW e fluxo de  $2 \times 10^{15}$  nêutrons/cm<sup>2</sup>.s)<sup>[16]</sup> e o HFIR (100 MW e fluxo de  $5,5 \times 10^{15}$  nêutrons/cm<sup>2</sup>.s)<sup>[37]</sup>. O material de partida era o peróxido de urânio, precipitado de uma solução aquosa de nitrato de urânio com adições de ácido nítrico ou hidróxido de amônio (para ajustar o pH em 2) e peróxido de hidrogênio ( $H_2O_2$ ). Com a calcinação do peróxido de urânio a 800°C por 6 horas em atmosfera de nitrogênio, obtinha-se o  $U_3O_8$  num estado aglomerado. Após moagem, aproveitava-se a fração entre 100 e 325 mesh (HFIR) ou menor do que 80 mesh (PRNC). O pó obtido nestas condições era sinterizado ao ar, a 1350 °C por 4 horas e, em seguida, a 1400 °C por 2 horas. O material sinterizado era finalmente moído, aproveitando-se a fração entre 170 e 325 mesh (HFIR) ou entre 100 e 325 mesh (PRNC).

Na Alemanha Ocidental, os trabalhos com  $U_3O_8$  foram iniciados há cerca de 20 anos, como parte do desenvolvimento de combustíveis de baixo enriquecimento e alta concentração para reatores de pesquisa e de teste de materiais. As informações disponíveis em literatura são de caráter bastante geral. No processo inicialmente

desenvolvido <sup>[38]</sup>, a matéria prima era o peróxido de urânio hidratado, precipitado de uma solução de nitrato de urânio (pH < 2). O peróxido era convertido a  $U_3O_8$  por calcinação ao ar. Em seguida, pastilhas eram compactadas e trituradas, obtendo-se grânulos classificados numa faixa de tamanho definida. Após isto, os grânulos eram sinterizados ao ar, a 1400 °C. A etapa de granulação foi posteriormente suprimida <sup>[39]</sup>. O  $U_3O_8$  obtido da calcinação do peróxido a 800 °C, era submetido a um tratamento a 1500 °C numa atmosfera de oxigênio.

Simultaneamente, outros processos foram implantados, empregando diferentes matérias primas como o tricarbonato de amônio e urânio (TCAU) <sup>[39]</sup> e o  $UF_4$  <sup>[40]</sup>, com ênfase dada à linha de produção proveniente do TCAU <sup>[41]</sup>. Na Argentina, o processo empregado na produção de  $U_3O_8$  <sup>[42]</sup> é basicamente o mesmo da planta Y-12, com algumas modificações. A matéria prima é o DUA, precipitado de uma solução de fluoreto de urânio resultante da hidrólise do hexafluoreto de urânio. O DUA é calcinado ao ar, a 800 °C durante 6 horas, obtendo-se um produto agregado. O  $U_3O_8$  então é moído e classificado entre 100 e 325 mesh, fração esta que é sinterizada a 1400 °C durante 6 horas. O produto sinterizado é desagregado e classificado na faixa entre 170 e 325 mesh.

No Brasil, e em particular no IPEN, a linha adotada até 1988 para o processamento de  $U_3O_8$ , dentro do programa de desenvolvimento de fabricação de combustíveis, era substancialmente diferente da adotada por outros países. No caso de se processar  $U_3O_8$  natural, a matéria prima, o diuranato de amônio proveniente do nitrato de urânio, era calcinado ao ar, a 750 °C por 3 horas, o mesmo acontecendo com o  $U_3O_8$  enriquecido importado. O pó calcinado era misturado a uma solução de aglomerante, sofrendo posterior secagem. O material aglomerado era pré-compactado em pastilhas que, após trituração, originavam grânulos menores do que 20 mesh. Nova compactação a pressões mais elevadas era então realizada, obtendo-se pastilhas que eram sinterizadas a 1350 °C durante 96 horas, após uma etapa de retirada do aglomerante a 350 °C durante cerca de 12 horas. Após a sinterização, as pastilhas eram moídas e o pó obtido classificado na faixa entre 100 e



325 mesh. Este era um processo complicado e moroso, principalmente na etapa de moagem das pastilhas sinterizadas. Além disto, o processo não permitia o aproveitamento da significativa quantidade de finos gerada (material inferior a 325 mesh). Com o objetivo de simplificar este processo e possibilitar o aproveitamento dos finos, reciclando-os no processo ainda no estado calcinado, Leal Neto <sup>[43]</sup> introduziu uma importante modificação neste processo. Os grânulos obtidos da moagem de pastilhas pré-compactadas a partir do  $U_3O_8$  calcinado eram sinterizados. Este novo processo permitiu a eliminação da etapa de trituração de pastilhas sinterizadas, extremamente penosa, permitindo a reciclagem dos grânulos calcinados inferiores a 325 mesh, mediante nova compactação em pastilhas, trituração e classificação granulométrica, o que aumentou significativamente o rendimento do processo. Este novo método de obtenção de  $U_3O_8$  foi implantado na linha de produção de elementos combustíveis do IPEN a partir de 1989, sendo ainda adotado nos dias de hoje. Conhecendo-se o contexto que envolve a produção de pó de  $U_3O_8$  apresentado acima, os principais objetivos deste trabalho podem agora ser melhor esclarecidos:

**1 – Desenvolver, propor e validar um novo método de obtenção de pó de  $U_3O_8$  que seja ainda mais simples do que o proposto por Leal Neto, eliminando-se a etapa de granulação do pó de  $U_3O_8$  calcinado, que seria simplesmente classificado granulometricamente após calcinação, sinterizado e novamente classificado na faixa de interesse.**

**2 - Substituir o DUA pelo T.C.A.U, padronizando-se a matéria prima obtida da reconversão do  $UF_6$ , de modo a viabilizar o processamento tanto do combustíveis tipo MTR, como também do tipo PWR pelo Centro de Processamento de Combustíveis<sup>[2]</sup> do IPEN.**

Adicionalmente, uma situação intermediária foi considerada, envolvendo a mera substituição da matéria prima, o DUA pelo TCAU, mantendo-se a etapa de granulação utilizada pelo método 1 (convencional). A figura 2.6 ilustra a proposta deste trabalho.

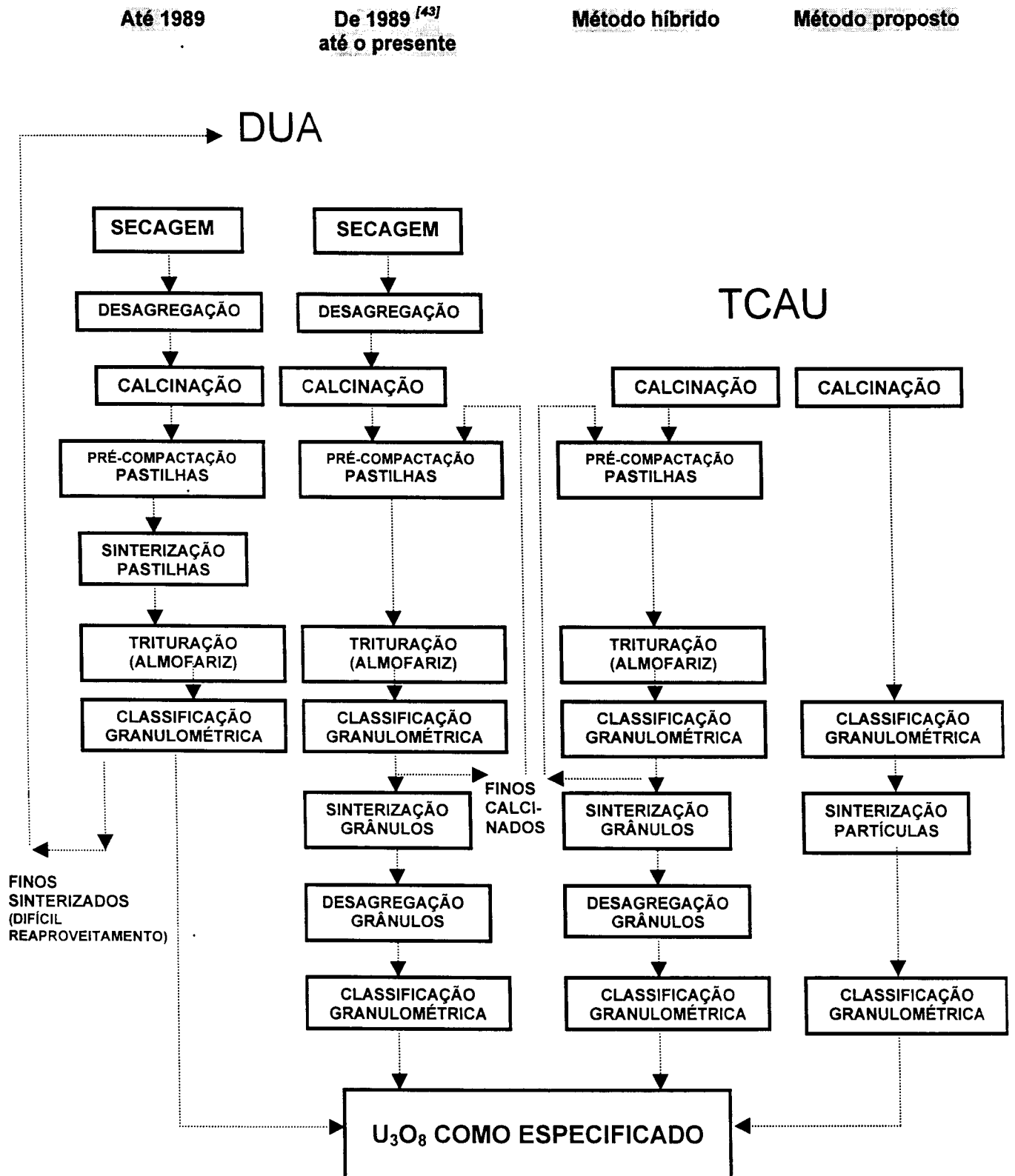


Figura 2.6 – Métodos de obtenção do pó de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> já utilizados no IPEN, híbrido e proposto.

### 3 PARTE EXPERIMENTAL

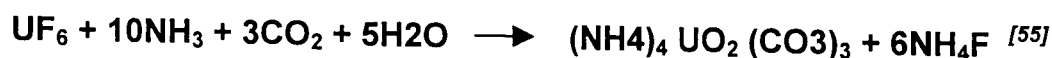
#### 3.1 Matéria prima

O  $U_3O_8$  a ser empregado na fabricação de placas utilizadas na confecção dos elementos combustíveis foi obtido a partir do Tricarbonato de Amônio e Uranilo (TCAU). O TCAU, um sal de urânio de coloração amarela de estrutura monocristalina, pode ser produzido a partir do Hexafluoreto de Urânio ( $UF_6$ ), ou então a partir de uma solução de Nitrato de Uranilo -  $UO_2(NO_3)_2$ .

No IPEN, o TCAU é proveniente do  $UF_6$ . Sua produção é realizada numa unidade piloto instalada na Divisão de Processos Químicos do Departamento de Ciclo do Combustível, (MCR), à razão aproximada de 29Kg por batelada, envolvendo as seguintes etapas <sup>[47]</sup>:

1. evaporação do  $UF_6$
2. reação do  $UF_6$  com amônia,  $CO_2$  e vapor d'água, precipitando-se o TCAU em condições controladas de vazão, pH, e temperatura.

A reação global pode ser dada por:



O tamanho e o formato do precipitado de TCAU, dependem da temperatura de precipitação, da velocidade de adição do  $UF_6$ , e do tipo de agitação usada durante sua precipitação <sup>[56, 57]</sup>. Do mesmo modo, as propriedades físicas e químicas do  $U_3O_8$  proveniente do TCAU dependem fortemente de seus parâmetros de precipitação. O TCAU utilizado no desenvolvimento deste trabalho foi produzido sob condições padronizadas, originalmente desenvolvidas no IPEN, visando a fabricação de pastilhas de  $UO_2$  para combustíveis de reatores de potência de água leve e pressurizada (PWR) <sup>[47]</sup>.

Foram processados dois lotes de T.C.A.U. O primeiro, de 1Kg, aqui denominado lote experimental, foi utilizado para a determinação de parâmetros de processo, como temperatura de calcinação e tempo de sinterização, que conferissem ao produto final as melhores características físico-químicas. O segundo, de 6Kg, denominado lote de comprovação, foi obtido a partir da melhor condição de obtenção do lote experimental, visando uma comparação com o processo atual de produção de pó de  $U_3O_8$  adotado no Departamento do Ciclo do Combustível. A massa deste lote é a máxima permitida por razões de criticalidade.

## **3.2 Processamento dos lotes de TCAU**

### **3.2.1 Processamento do lote experimental**

Para a obtenção de um pó de  $U_3O_8$  a partir do método ora proposto que atendesse o mais adequadamente possível às especificações, foram feitos alguns testes de calcinação do TCAU, nos quais foi variada a temperatura de calcinação, mantendo-se constantes os demais parâmetros de processo, como tempo, massa calcinada e altura da camada de pó nos botes de calcinação.

#### **3.2.1.1 Calcinação do TCAU a $U_3O_8$ (lote experimental)**

Partiu-se de um lote de 1kg de TCAU conforme descrito anteriormente. Não foi necessária uma operação prévia de secagem, já que o pó apresentou-se com escoabilidade adequada a seu manuseio, com pequenos e discretos torrões, facilmente desagregados durante o carregamento dos botes de calcinação. Foram utilizados botes de inonel de mesmas dimensões, cada qual utilizado em uma condição de calcinação e carregado com 300g de TCAU. Uma vez carregado, cada bote foi posicionado no interior do forno e este aquecido à taxa de  $100^\circ\text{C}$  a cada 30 min., na região de menor gradiente térmico ( $35^\circ\text{C}$ ). A transformação do TCAU em  $U_3O_8$  foi efetuada mediante aquecimento ao ar, em forno resistivo tipo caixa. Três temperaturas foram testadas, 600, 700 e  $800^\circ\text{C}$ , mantendo-se

constante o tempo do patamar isotérmico (3 horas). Com base na análise termogravimétrica do TCAU e na difratometria de raios X do  $U_3O_8$  calcinado, definiu-se a temperatura mínima de calcinação em  $600^\circ C$ . O tempo de 3 horas mostrou-se suficiente para a completa transformação do TCAU em  $U_3O_8$ . Após resfriamento ao ar, os pós calcinados foram caracterizados quanto à densidade aparente, área de superfície específica, e impurezas presentes.

### **3.2.1.2 Classificação granulométrica do $U_3O_8$ calcinado (lote experimental)**

O pós de  $U_3O_8$  oriundos de cada calcinação foram introduzidos em uma caixa de luvas com umidade relativa de 35% e classificados granulometricamente por peneiramento vibratório em lotes de 100g durante 15 minutos. Foram separadas a fração menor que  $44\mu m$  e a compreendida entre  $44$  e  $177\mu m$ , esta última propícia à sinterização <sup>[46]</sup>. Não houve retenção de partículas na peneira com aberturas de  $177\mu m$  (80 mesh).

### **3.2.1.3 Sinterização do $U_3O_8$ (lote experimental)**

Uma vez calcinados e classificados, os pós de  $U_3O_8$  de ambas as faixas granulométricas, foram sinterizados separadamente em forno resistivo tipo caixa (dotado de 8 resistores de carbeto de silício dispostos nas laterais da câmara em 2 grupos de 4) a  $1400^\circ C$  durante 6h. Esta temperatura foi adotada tendo-se em vista os resultados obtidos por Leal Neto <sup>[43]</sup>, os quais demonstraram que pós de  $U_3O_8$  sinterizados durante 6 e 24h apresentaram pouca diferença em termos de características físicas. Foram utilizados 2 botes iguais de alumina, um para cada faixa granulométrica. Os botes, carregados com uma camada de pó de 3cm de espessura, foram posicionados na região compreendida pelos resistores, de menor gradiente térmico ( $20^\circ C$ ). A taxa de aquecimento até os  $650^\circ C$  foi de  $100^\circ C/20min$  e, daí até os  $1400^\circ C$ , foi de  $75^\circ C/15min$ , com controle manual de temperatura. Decorridas as 6 horas, o forno foi resfriado a uma taxa de

50°C/15min, até os 1100°C. Neste instante, o forno foi desligado e o resfriamento deu-se de forma natural.

#### **3.2.1.4 Classificação granulométrica do $U_3O_8$ sinterizado (lote experimental)**

Uma vez resfriado à temperatura ambiente, o  $U_3O_8$  sinterizado foi classificado granulometricamente por peneiramento vibratório durante 15 minutos em lotes de 100 g, tanto em relação aos finos de calcinação (material abaixo de 44  $\mu\text{m}$ ), quanto em relação ao material na faixa de interesse (entre 44 e 177  $\mu\text{m}$ ). Neste caso foram utilizadas as peneiras de 44 e 88  $\mu\text{m}$ , definindo-se frações abaixo de 44  $\mu\text{m}$  (finos) e entre 44 e 88  $\mu\text{m}$  relativas a cada condição de calcinação. As duas frações foram classificadas em separado.

### **3.2.2 Processamento do lote de comprovação**

A partir da caracterização dos pós de  $U_3O_8$  calcinados e sinterizados do lote experimental de TCAU, foi possível determinar a melhor condição de processamento dentre as testadas para o lote de comprovação, ou seja, o lote de tamanho característico de produção.

#### **3.2.2.1 Calcinação do TCAU (lote de comprovação)**

Para a calcinação dos 6Kg de TCAU foram utilizados 10 botes de inonel por operação, idênticos aos utilizados na calcinação do lote experimental, cada qual também carregado com 300g de TCAU, sendo necessárias portanto 2 calcinações. Cada uma destas 2 operações desenvolveu-se de modo análogo ao anteriormente descrito, no que diz respeito ao posicionamento de botes e à taxa de aquecimento. O material proveniente das 2 calcinações foi homogeneizado por 10 minutos num misturador do tipo 'V'.

### **3.2.2.2 Classificação granulométrica do $U_3O_8$ calcinado (lote de comprovação)**

Uma vez recolhido, o material calcinado foi classificado granulometricamente dentro de caixa de luvas, com umidade relativa mantida em 35%, em lotes de 100 g durante 15 minutos, mediante peneiramento vibratório. Foram classificados o material menor que 44  $\mu m$ , o compreendido entre 44 e 177  $\mu m$  e o maior que 177  $\mu m$ . Foram efetuadas 32 operações de peneiramento, com lavagem das peneiras a cada 2 operações em tanque provido de ultra-som, seguida de secagem em estufa aquecida a 80°C durante 1 hora.

### **3.2.2.3 Sinterização do $U_3O_8$ (lote de comprovação)**

Foram conduzidas 2 operações de sinterização para a quantidade de  $U_3O_8$  calcinado e classificado granulometricamente. Na primeira, foi sinterizado o material na faixa de interesse (entre 44 e 177 $\mu m$ ), divididos em 2 botes planos de alumina, de base quadrada (lado igual a 15 cm), com altura de carregamento máxima igual a 3cm. Na segunda, foram sinterizados o material restante na faixa entre 44 e 177 $\mu m$  e os finos de calcinação (menor do que 44  $\mu m$ ) dispostos nos mesmos 2 botes de alumina empregados na sinterização anterior. Todas as demais condições de sinterização empregadas no lote experimental, como taxa de aquecimento, tempo de sinterização, temperatura de tratamento e taxa de resfriamento, foram mantidas no lote de comprovação, incluindo-se o mesmo forno de sinterização.

### **3.2.2.4 Classificação granulométrica do $U_3O_8$ sinterizado (lote de comprovação)**

Todo o  $U_3O_8$  proveniente das duas sinterizações foi classificado, mediante peneiramento em lotes de 250g durante 60min., a fim de separar-se o material menor que 44 $\mu m$ , o compreendido entre 44 e 88 $\mu m$  e o maior que 88 $\mu m$ . Para esta quantidade de material, 60 minutos de peneiramento foram suficientes para a

obtenção dos mesmos resultados obtidos em classificação de 100g do mesmo material peneirado por 15min. Foram peneirados 12 lotes dentro de caixa de luvas com umidade relativa igual a 35%. Os resultados desta classificação encontram-se dispostos na tabela 3.1 . Observa-se que a partir de 60 minutos não há mais variação das quantidades de pó classificadas.

Tabela 3.1 - evolução temporal da classificação granulométrica de  $U_3O_8$  sinterizado proveniente do TCAU (método 2, lote de comprovação)

Quantidade de Material Peneirado/Tempo de Peneiramento	MATERIAL NA FAIXA(g - %)		
	Maior que 88 $\mu$ m	Entre 44 e 88 $\mu$ m	Menor que 44 $\mu$ m
100 g/15 min	0	71g - 71%	29g - 29%
250 g/15 min	30g - 12%	183g - 73%	37g - 15%
250 g/30 min	13g - 5%	190g - 76%	47g - 19%
250 g/45 min	5g - 2%	180g - 72%	65g - 26%
<b>250 g/ 60 min</b>	<b>0</b>	<b>178g - 71%</b>	<b>72g - 29%</b>
250 g/ 75 min	0	178g - 71%	72g - 29%

### 3.3 Fabricação de placas combustíveis

Com o objetivo de se verificar a viabilidade de adoção do método aqui proposto na produção rotineira de combustíveis, do lote de comprovação foi extraído o  $U_3O_8$  empregado na fabricação de 9 placas combustíveis, em três condições de especial interesse:

- $U_3O_8$  entre (44 e 88) $\mu$ m acrescido de 20% de finos (<44 $\mu$ m) normalmente gerados pelo método 1 (convencional), originando as placas **01, 02 e 03/95**.

- $U_3O_8$  entre (44 e 88) $\mu$ m acrescido de 29% de finos (<44 $\mu$ m), quantidade gerada pelo método 2 (proposto), originando as placas **04, 05 e 06/95**.



-  $U_3O_8$  entre (44 e 88) $\mu m$ , sem qualquer acréscimo de finos, buscando-se avaliar o grau de fragmentação das partículas de  $U_3O_8$  após a laminação, originando as placas **07, 08 e 09/95**.

Além destas três condições, uma condição adicional de fabricação a partir do lote de comprovação foi efetuada, acrescentando-se ao método proposto entre sua etapa de calcinação e de sinterização, uma granulação do  $U_3O_8$  proveniente do TCAU, compreendendo as etapas de pré-compactação, trituração e classificação granulométrica realizadas exatamente como no método convencional. Segundo este método, já mencionado em 2.2.4, doravante chamado de método híbrido, foram fabricadas 3 placas combustíveis, segundo a condição:

-  $U_3O_8$  entre (44 e 88) $\mu m$ , com 20% de finos (<44 $\mu m$ ) normalmente gerados pelo método 1 (convencional), buscando-se avaliar a importância da granulação no tamanho e na morfologia das partículas desse pó, originando as placas **10, 11 e 12/95**.

As condições de fabricação destas placas foram as mesmas adotadas no procedimento padronizado de produção de combustíveis contendo 1,9 gU/cm<sup>3</sup>. De cada uma das condições acima, escolheu-se 1 placa da qual foram extraídos convenientemente 4 corpos de prova para análise metalográfica, comparando-se os resultados obtidos àqueles de 1 placa convencional (placa 432, fabricada com urânio enriquecido, precipitado de uma solução de nitrato de uranilo) representativa de um lote qualificado, que já se encontra em operação no Reator IEA-R1m.

### 3.3.1 Mistura e compactação dos pós de $U_3O_8$ e de Alumínio

Foram fabricados 12 briquetes de  $U_3O_8$ -Al, com 1,9 gU/cm<sup>3</sup>, dos quais se originaram as placas nas condições anteriormente descritas. As composições de cada briquete compactado, em termos de massa das faixas granulométricas de cada um dos pós envolvidos ( $U_3O_8$  e Alumínio), encontram-se na tabela 3.2.

Tabela 3.2 - Composição dos briquetes geradores das placas em estudo

Briquete Nº	mU <sub>3</sub> O <sub>8</sub> (g)		mAl (g)
	D < 44µm	(44<D<88)µm	D < 44µm
01/95	11,70	46,82	46,78
02/95	11,70	46,82	46,78
03/95	11,70	46,82	46,78
04/95	16,97	41,55	46,78
05/95	16,97	41,55	46,78
06/95	16,97	41,55	46,78
07/95	0	58,52	46,78
08/95	0	58,52	46,78
09/95	0	58,52	46,78
10/95	11,70	46,82	46,78
11/95	11,70	46,82	46,78
12/95	11,70	46,82	46,78

Utilizou-se na mistura com o pó de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, o pó de alumínio de pureza comercial tipo 1100, com partículas menores que 44µm. Após pesagem em balança Mettler (sensibilidade de 0,01g) dos pós de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> e de Al previamente secos em estufa a 80°C por 2h em potes de vidro, procedeu-se à mistura das 12 cargas em homogeneizador assemelhado a uma "roda gigante", girando a 36 rpm durante 2h. Homogeneizadas, as misturas foram armazenadas em estufa a 80°C, durante um período não superior a 24 horas. Uma vez homogeneizadas e secas, cada mistura foi cuidadosamente carregada em matriz flutuante e compactada hidráulicamente a  $3,9 \cdot 10^2$  Mpa, originando-se os 12 briquetes.

### 3.3.2 Desgaseificação de briquetes

Com o intuito de remoção de eventuais gases adsorvidos e de lubrificantes usados em sua compactação, os briquetes foram desgaseificados a vácuo numa retorta aquecida a 540°C durante 3 horas, atingindo-se pressões da ordem de  $10^{-4}$  torr. Uma vez desgaseificados, os 12 briquetes foram armazenados em dessecador e mantidos à pressão de  $10^{-1}$  torr.

### 3.3.3 Montagem de conjuntos para laminação

Cada conjunto a ser laminado é constituído por um núcleo (briquete de  $U_3O_8-Al$ ) montado por interferência em uma moldura, ambos envolvidos por duas placas de revestimento, todas de alumínio tipo 1050. Faz-se um sanduíche com as placas de revestimento envolvendo a moldura e o núcleo (briquete) nela inserido, soldando-se o conjunto em dez pontos distintos, quatro ao longo da largura e seis ao longo do comprimento, utilizando-se soldagem T.I.G. Os lados do conjunto não são inteiramente soldados, para que o ar presente em seu interior possa escapar nos primeiros passes de laminação.

### 3.3.4 Laminação dos conjuntos em placas combustíveis

Após soldagem, cada conjunto é laminado a quente, em laminador da marca Stanat-Mann, (cilindros com 127 mm de diâmetro e 203 mm de comprimento), ocorrendo o caldeamento entre a moldura e o núcleo com as placas de revestimento. Efetuou-se um tratamento superficial prévio de limpeza química alcalina de molduras e revestimentos (decapagem), para que o caldeamento ocorresse com perfeição. Foram efetuados dez passes de laminação a quente, com 25% de redução nos 2 primeiros passes e 15% nos demais. Antes do primeiro passe, os conjuntos foram aquecidos a 580°C por uma hora e mantidos a 580°C por 15 min. entre os demais passes. Após o último passe de laminação a quente, realizou-se um ensaio chamado de empolamento. O ensaio consiste no aquecimento das placas laminadas a 500°C durante uma

hora, seguido de resfriamento ao ar, a fim de que fossem aliviadas eventuais tensões residuais. O objetivo do ensaio é o de averiguar a ocorrência de eventuais 'blisters' (bolhas) provenientes de um caldeamento imperfeito entre moldura, núcleo e placas de revestimento. Uma vez realizado o ensaio de empolamento, procedeu-se a uma laminação a frio de cada uma das placas, visando conferir às mesmas a necessária resistência mecânica decorrente do encruamento, além da espessura final desejada.

### 3.4 Preparação de amostras para metalografia

#### 3.4.1 Corte metalográfico

Das 12 placas laminadas descritas em 3.3, foram escolhidas para análise metalográfica placas representativas de cada uma das condições: **01/95 (20% finos)**, **05/95 (29% finos)** e **07/95 (0% de finos)** obtidas pelo **método 2 (proposto)**, bem como a placa **11/95 (20% finos)** obtida pelo método híbrido. De cada uma dessas placas, foram extraídas convenientemente 4 amostras nas regiões de interesse (**B, C, E, G**), segundo o esquema mostrado na figura 3.1. Os resultados destas placas foram comparados àqueles de uma placa confeccionada com  $U_3O_8$  produzido pelo **método 1 (convencional)**, a de número **432**, representativa de um lote qualificado, também contendo  $1,9 \text{ gU/cm}^3$  e que já se encontra em operação no Reator IEA-R1m. Cabe ressaltar que a metalografia, um ensaio destrutivo, é utilizada no controle da produção atualmente por amostragem, à base de 1 placa por lote de 20 placas laminadas.

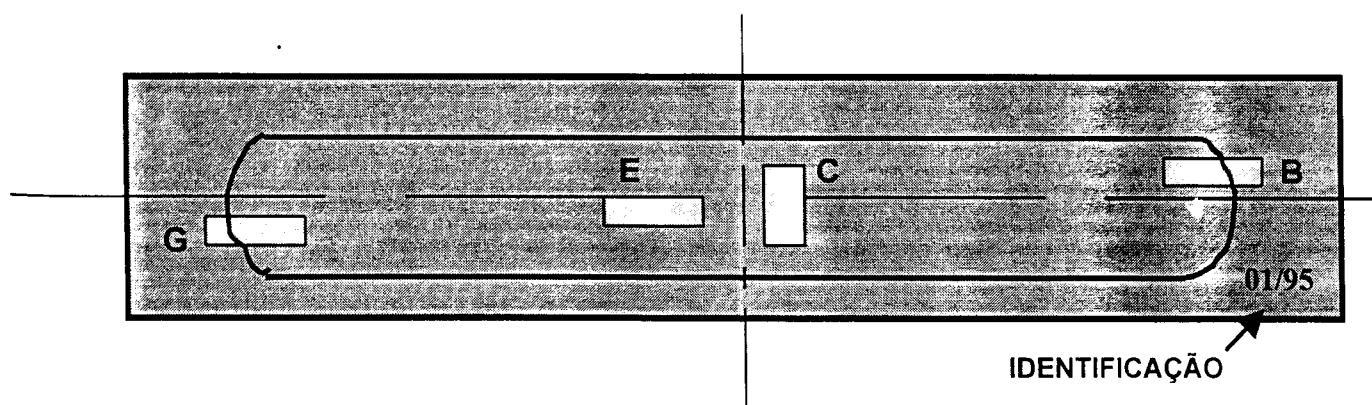


Figura 3.1 - Plano de corte de uma placa combustível – regiões B, C, E, G.

Após a localização do núcleo através de sua radiografia, efetuou-se a traçagem das regiões para corte com riscador nas 4 placas escolhidas. Foi feito em cada placa um pré-corte com guilhotina, sendo obtidas amostras retangulares de dimensões (10 x 20)mm. Cada um destes corpos de prova foi cortado ao meio na direção longitudinal empregando-se cortadeira de precisão com disco diamantado.

### **3.4.2 Embutimento das amostras**

Optou-se pelo embutimento em resina de cura a frio. Misturaram-se quantidades determinadas de resina líquida e catalizador de endurecimento, suficientes para o embutimento de 2 amostras. Cada amostra foi fixada por presilhas dentro de um molde plástico cilíndrico. Buscou-se posicionar simetricamente a amostra no centro do molde plástico, a fim de manter a simetria de polimento. Uma vez preparada, a resina foi imediatamente vertida dentro dos moldes, evitando-se sua cura precoce. Após 30 minutos, cada amostra foi desmoldada e identificada.

### **3.4.3 Impregnação dos corpos de prova**

Para realização de análise de imagens das placas combustíveis via metalografia quantitativa, é de suma importância que possamos identificar e quantificar duas fases distintas dispersas na matriz de alumínio: as partículas de  $U_3O_8$  e a porosidade do núcleo laminado. Os poros constituem-se em vazios alongados na direção de laminação, decorrentes do arraste e/ou da fragmentação de partículas de  $U_3O_8$  na matriz de alumínio durante a laminação. Deste modo, torna-se necessário minimizar o arrancamento das partículas de  $U_3O_8$  durante o polimento das amostras, sob pena de se superestimar a porosidade. Isto foi conseguido mediante impregnação das amostras com resina, que em seu estado líquido preenche e preserva a porosidade inicial, melhorando após a cura a aderência das partículas de  $U_3O_8$  na matriz e conseqüentemente diminuindo a ocorrência de arrancamento durante o polimento.

Antes da impregnação, as amostras foram lavadas em água com auxílio de ultra-som por não mais que 1 minuto (para evitar-se a cavitação) e secas com álcool. Após secagem, 4 amostras extraídas de uma mesma placa foram introduzidas na campânula de impregnação onde foi feito vácuo da ordem de  $10^{-1}$  torr. Após 5 minutos nessa condição, iniciou-se também sob vácuo o gotejamento de resina líquida sobre as faces a serem polidas de cada amostra, evitando-se a presença de bolhas após solidificação da mesma. Após todo o gotejamento, o vácuo foi mantido por mais 10 minutos antes de ser interrompido. As amostras permaneceram na campânula por 48 horas para a cura total da resina.

#### **3.4.4 Polimento dos corpos de prova**

Objetivando-se obter imagens com a requerida qualidade para a análise metalográfica, cada corpo de prova impregnado com resina foi submetido à seguinte seqüência de etapas de polimento:

- Retirada de resina em lixadeira manual, utilizando-se papéis abrasivos de carbeto de silício com granulometrias de 220, 400 e 600 mesh, alternando-se sistematicamente a direção de  $90^\circ$  entre cada lixamento. Lavagem cuidadosa entre as etapas com algodão, água e detergente e secagem com álcool, algodão e jato de ar quente;

- Polimento automático a 120 rpm em feltro umedecido com querosene e impregnado com pasta de diamante. Uso seqüencial das pastas de  $6\mu\text{m}$ ,  $3\mu\text{m}$  e  $1\mu\text{m}$  durante 2 horas, com emprego de um disco de feltro diferente para cada pasta. Lavagem e secagem entre polimentos como já descrito, evitando-se transportar partículas de diamante para os feltros subseqüentes.

- Polimento automático em feltro imerso em solução aquosa de sílica coloidal por 3 minutos, lavagem e secagem.

Durante o polimento automático, entre cada uma de suas etapas, a amostra foi observada em microscópio óptico, avaliando-se a qualidade do polimento. Foi observado o procedimento adequado ao manuseio de material radioativo estabelecido para esta situação.

### **3.5 Métodos de caracterização físico-química de pós**

#### **3.5.1 Termogravimetria do TCAU**

A análise termogravimétrica foi utilizada para a determinação da temperatura de transformação do TCAU em  $U_3O_8$ . As análises foram realizadas ao ar, com fluxo de  $41 \text{ cm}^3/\text{min}$  e taxa de aquecimento de  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  em módulo analisador termogravimétrico Perkin-Elmer do Departamento de Engenharia Química do Ipen.

#### **3.5.2 Determinação do teor de impurezas do $U_3O_8$**

As impurezas metálicas foram determinadas por espectrografia semiquantitativa de emissão. Foi utilizado o espectrógrafo Jarrel-Ash do Ipen.

#### **3.5.3 Difractometria de Raios-X**

Esta técnica foi utilizada na caracterização do  $U_3O_8$  processado a partir do TCAU. Foi utilizado um tubo de cobre ( $K_\alpha = 0,154178\text{nm}$ ). Esta análise foi realizada em difratômetro de marca Rigaku-Denki, modelo Geiger Flex.

### 3.5.4 Área de Superfície Específica do $U_3O_8$

O método normalmente utilizado para a determinação da área de superfície específica de uma amostra particulada é baseado na adsorção física de um gás, geralmente o nitrogênio, pelas partículas da amostra mantida à temperatura aproximada de  $-190\text{ }^\circ\text{C}$ . Nessas condições, assume-se que uma monocamada uniforme de moléculas do gás seja adsorvida pelas partículas da amostra. Calcula-se então a área de superfície específica com base no volume de gás da monocamada e na área coberta por uma única molécula do gás. Utilizou-se um equipamento da marca Ströhlein Instruments modelo Areameter II. O menor valor confiável capaz de ser medido pelo aparelho com nitrogênio é igual a  $0,1\text{m}^2/\text{g}$ .

### 3.5.5 Microscopia Eletrônica de Varredura

O exame da morfologia das partículas de TCAU,  $U_3O_8$  calcinado e  $U_3O_8$  sinterizado foi realizado em microscópio eletrônico de varredura do Departamento de Engenharia Elétrica da USP e, a seguir, em outro equipamento do Ipen, da marca Cambridge Scientific Instruments Limited, modelo Stereoscan S4. Cada amostra foi dispersa a seco em porta-amostra circular de alumínio e recoberta com ouro.

### 3.5.6 Porosimetria de Mercúrio

A determinação da densidade aparente de pós de  $U_3O_8$  é extremamente importante do ponto de vista de sua capacidade de retenção de produtos de fissão, por considerar não apenas a porosidade fechada das partículas, aquelas sem comunicação com o meio exterior, mas também a aberta, incapaz de reter tais produtos. Apesar da picnometria com Hélio ser uma técnica automatizada e rápida, seus resultados não têm se mostrado reproduzíveis para aplicações com  $U_3O_8$ . Sendo assim, a porosimetria de mercúrio foi a técnica utilizada para a determinação da densidade aparente dos pós de  $U_3O_8$ , por apresentar maior



confiabilidade de resultados na medição da porosidade aberta. Leal Neto<sup>[43]</sup> descreve em detalhes o princípio do método. O porosímetro utilizado foi o Autopore II 9220 da marca Micromeritics. O pó a ser analisado é colocado num recipiente chamado penetrômetro, com função análoga à de um picnômetro, preenchido com mercúrio (de elevada tensão superficial e, portanto, de baixa molhabilidade) e submetido a dois estágios de pressão: o de baixa e o de alta pressão. No primeiro estágio (até 10 psia), ocorre o preenchimento pelo mercúrio dos vazios interparticulares e no segundo (até 60.000 psia), ocorre o preenchimento pelo mercúrio dos poros abertos das partículas. Para cada pressão aplicada, calcula-se o diâmetro médio do poro que sofreu penetração, supondo-se que o mesmo tenha forma cilíndrica. Seu diâmetro pode ser calculado pela expressão de Washburn :

$$D = - (1/p) \cdot 4\sigma \cdot \cos\theta \quad (1)$$

sendo D o diâmetro do cilindro equivalente preenchido com mercúrio, de tensão superficial  $\sigma$  e ângulo de contacto  $\theta$  com o material ensaiado. O poro de menor diâmetro mensurável é de 0,003 $\mu$ m, correspondente à pressão máxima de intrusão de 60.000 psia. A figura 3.2 apresenta **curvas típicas** de intrusão (mm de Hg/g da amostra) acumulada e incremental, a partir das quais pode ser calculada a densidade aparente de um pó.

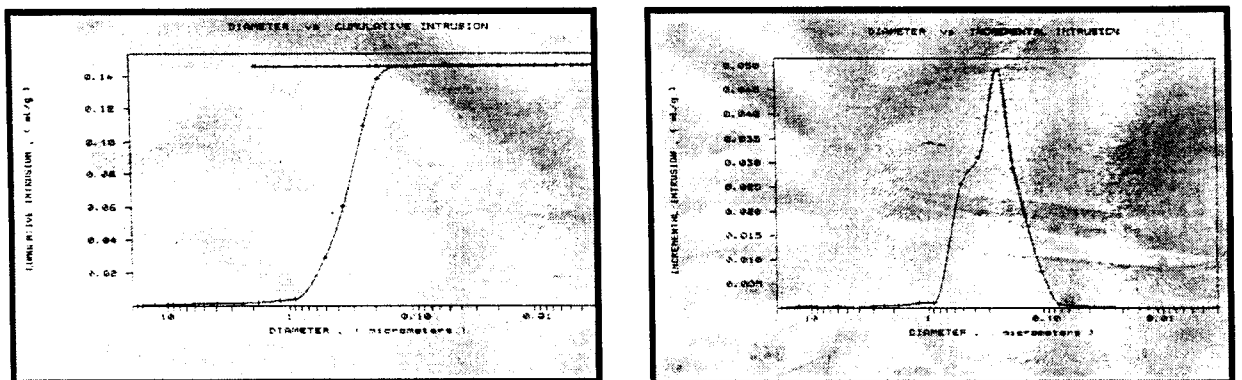


Figura 3.2 - Curvas típicas de intrusão (mm de Hg/g da amostra) acumulada e incremental,  $U_3O_8$  sinterizado.

Sejam:

-  $D_I$  a densidade ( $\text{g/cm}^3$ ) obtida no instante da penetração inicial de mercúrio a 10 psia;

-  $D_A$  a densidade aparente das partículas ( $\text{g/cm}^3$ ), igual à razão entre sua massa e seu volume aparente (volume da parte sólida + volume de poros fechados + volume de poros abertos);

-  $D_F$  a densidade final ( $\text{g/cm}^3$ ) obtida com penetração máxima de mercúrio a 60.000 psia, relativa apenas ao volume da parte sólida e dos poros fechados, já que os poros abertos encontram-se preenchidos com mercúrio à máxima intrusão;

$D_I$  foi calculado pela seguinte expressão:

$$D_I = \frac{W_s}{V_p - \left( \frac{W_{psm} - W_s - W_p}{Y_m} \right)} \quad (2)$$

onde

$W_s$  = massa da amostra (g);

$V_p$  = volume do penetrômetro usado como picnômetro ( $\text{cm}^3$ );

$W_{psm}$  = massa da amostra, penetrômetro e mercúrio intruso até 10 psia (g);

$W_p$  = massa do penetrômetro, (g);

$Y_m$  = densidade do mercúrio, à temperatura de análise,  $\text{g/cm}^3$ ;

$D_A$  foi então calculado:

$$D_A = \frac{1}{D_I - V_a} \quad (3)$$

onde:

$V_a$  = volume específico acumulado de Hg penetrado no 1º patamar da curva de intrusão ( $\text{cm}^3 \text{ Hg/g}$  de amostra). O início do 1º patamar representa o término do

primeiro estágio de intrusão, quando passam a inexistir espaços vazios entre as partículas.

$D_F$  pode ser calculado como  $D_A$ , porém substituindo-se  $V_a$  por  $V_f$ , que é o volume específico máximo de mercúrio penetrado no 2º patamar da curva de intrusão ( $\text{cm}^3 \text{ Hg/g}$  de amostra), que ocorre com a máxima pressão de intrusão (60.000 psia) e representa o início da intrusão de mercúrio na porosidade aberta das partículas.

### 3.6 Métodos de caracterização física de placas combustíveis

#### 3.6.1 Densidade de núcleos das placas laminadas

Procedeu-se à determinação das densidades dos núcleos das 12 placas laminadas nas condições de interesse descritas em 3.3, utilizando-se o método hidrostático de Arquimedes. As placas foram imersas uma a uma em água contida num tanque com controle de temperatura. O volume do núcleo laminado é dado por:

$$V_n = \frac{M_p - M_i}{D_a} - \frac{M_p - M}{D_{al}} \quad (4)$$

onde:

$V_n$  = volume do núcleo laminado,  $\text{cm}^3$ .

$M_p$  = massa da placa, g.

$M_i$  = massa da placa imersa em água, g.

$D_a$  = densidade da água à temperatura de ensaio,  $\text{g/cm}^3$ .

$M_n$  = massa do núcleo, g.

$D_{al}$  = densidade do alumínio,  $\text{g/cm}^3$ .

A densidade do núcleo laminado é dada por:  $D_n = \frac{M_n}{V_n} \quad (\text{g/cm}^3) \quad (5)$

A porosidade do núcleo laminado é dada por:  $P_n = 1 - \frac{D_n}{D_t} \times 100 \quad (\%) \quad (6)$

$D_t$  = densidade teórica da dispersão  $U_3O_8\text{-Al}$  (para  $1,9\text{gU/cm}^3$ ) =  $4,34\text{gU/cm}^3$ .

### 3.6.2 Radiografia das placas combustíveis

As 12 placas combustíveis laminadas em seu estado bruto, foram radiografadas individualmente numa dada condição, visando-se localizar o núcleo com a precisão necessária para corte das mesmas. Uma vez cortadas, foram radiografadas numa outra condição, com maior qualidade, empregando-se um filme radiográfico extra-lento, utilizado inclusive no campo da aviação. Esta condição radiográfica possibilita a análise da homogeneidade com que o  $U_3O_8$  se distribui na matriz de alumínio, bem como da eventual presença de trincas no núcleo laminado e de defeitos terminais como contaminação por partículas de  $U_3O_8$  que escapam do núcleo durante a laminação. Uma vez aprovadas, as placas são submetidas à radiografia final, a fim de ser efetuado o definitivo controle dimensional que antecede a montagem do elemento combustível, envolvendo medidas de comprimento e de largura de núcleos e de placas. Com o intuito de não se laminar um briquete defeituoso em termos de trincas e/ou de heterogeneidades das partículas de  $U_3O_8$  na matriz de alumínio, radiografa-se o briquete após sua compactação, minimizando-se a incidência de placas defeituosas, com economia das etapas posteriores à laminação. As condições de radiografia de briquetes e placas combustíveis encontram-se dispostas na tabela 3.3.

Tabela 3.3 - Condições de radiografia de briquetes e placas combustíveis

OBJETO	TIPO DE FILME	TEMPO EXPOSIÇÃO(s)	DISTÂNCIA FOCO-FILME (cm)	TENSÃO (KV)	CORRENTE (mA)
BRIQUETE	D4	300	70	105	7
PLACA (Defeito Contam.)	D2	70	70	100	4,5
PLACA (Localização /Final)	D7	20	150	50	2,5

### 3.6.3 Análise de imagens da metalografia das placas laminadas

As imagens obtidas da metalografia das placas (01, 05, 07)/95, (método proposto, respectivamente com 20, 29 e 0% de finos) e 11/95 (método híbrido, 20% de finos), foram utilizadas visando-se quantificar o grau de fragmentação das partículas de  $U_3O_8$  dispersas na matriz de alumínio após laminação em cada uma dessas placas e compará-lo ao ocorrido na placa 432 (método convencional, 20% de finos).

A distribuição volumétrica de tamanho de partículas de um núcleo laminado, mais adequada à sua perfeita caracterização do que sua distribuição superficial de tamanhos, é obtida a partir de resultados de seções bidimensionais de amostras, utilizando-se o método de Saltykov <sup>[1]</sup>.

Basicamente, este método através de correções estereométricas, transforma informações do espaço bidimensional em tridimensional. Supõe-se um sistema composto por esferas de raio unitário, distribuídas uniformemente no espaço. Essas esferas são cortadas por um plano aleatório, sendo cada círculo da interseção contado e classificado em classes de tamanho de diâmetro segundo uma série geométrica. Calculam-se as probabilidades de ocorrência das seções de corte correspondentes a cada classe de tamanho. Estes valores de probabilidades são utilizados no cálculo das distribuições de tamanho de microestruturas reais. A distribuição volumétrica de tamanho de partículas foi obtida utilizando-se o analisador microestrutural Quantikov <sup>[1]</sup>, provido de módulos para processamento digital de imagens, quantificação geométrica, geração de gráficos e planilhas, dentre outros. Seu módulo principal (Quantikov-Main), responsável pela quantificação geométrica, implementa o método de Saltykov, podendo assumir morfologia de partículas, poros e grãos baseada no diâmetro de sua esfera equivalente ou em sua máxima largura. O sistema Quantikov <sup>[1]</sup> foi desenvolvido por seu criador na plataforma Windows<sup>TM</sup>. Como já descrito em 3.4.1, das placas 01, 05 e 07/95 (método proposto, com 20, 29, e 0% de finos respectivamente), 11/95 (método híbrido, com 20% finos), bem como da 432 (método convencional, 20% finos), foram extraídos 4 corpos de prova

retangulares (B, C, E, G) , perfazendo um total de 20 amostras. Cada uma delas foi observada em um microscópio óptico da marca Olympus modelo AH3-UMA, provido de analisador de imagens bidimensionais Leica. Foram geradas 6 imagens de cada amostra, totalizando 120 imagens digitalizadas. Uma vez gravadas, essas 120 imagens plenas contendo poros e partículas de  $U_3O_8$  dispersas na matriz de alumínio, foram processadas digitalmente e desmembradas em 240 outras imagens, metade das quais contendo apenas partículas e o restante, apenas a porosidade, graças aos recursos disponíveis no analisador microestrutural Quantikov <sup>[1]</sup>. A título de melhor compreensão, as figuras 3.3, 3.4 e 3.5 apresentam 3 imagens dentre as 360, por exemplo, da placa **01/95** relativas à **região B4**, sendo:

- 1 imagem plena, contendo **partículas e poros (01/95-B4)**, figura 3.3.
- 2 imagens parciais, contendo **somente partículas ( b 01/95-B4 )** e **(c 01/95-B4) contendo somente poros**), figuras 3.4 e 3.5.

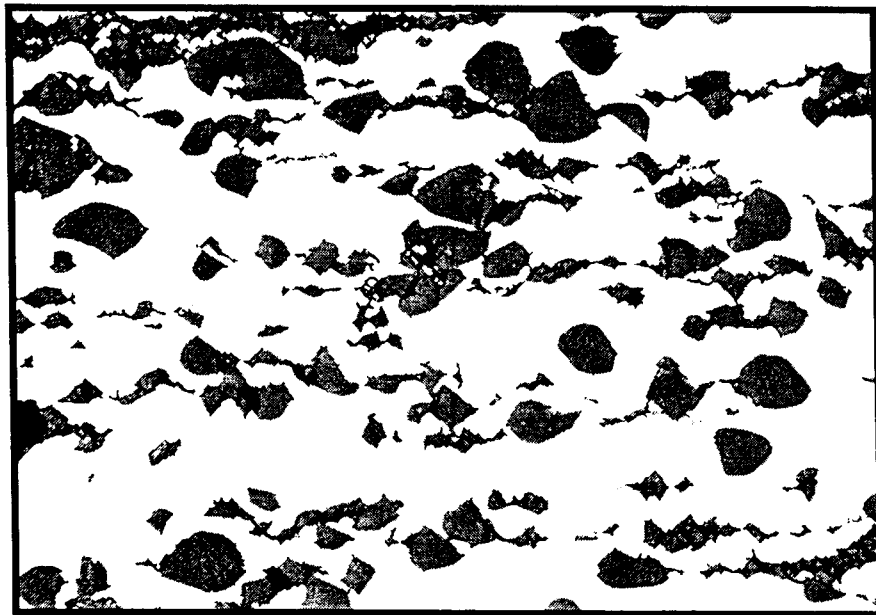


Figura 3.3 – Placa 01/95, região B4; imagem plena, contendo partículas de  $U_3O_8$  e poros, dispersos na matriz de alumínio. Aumento: 550X

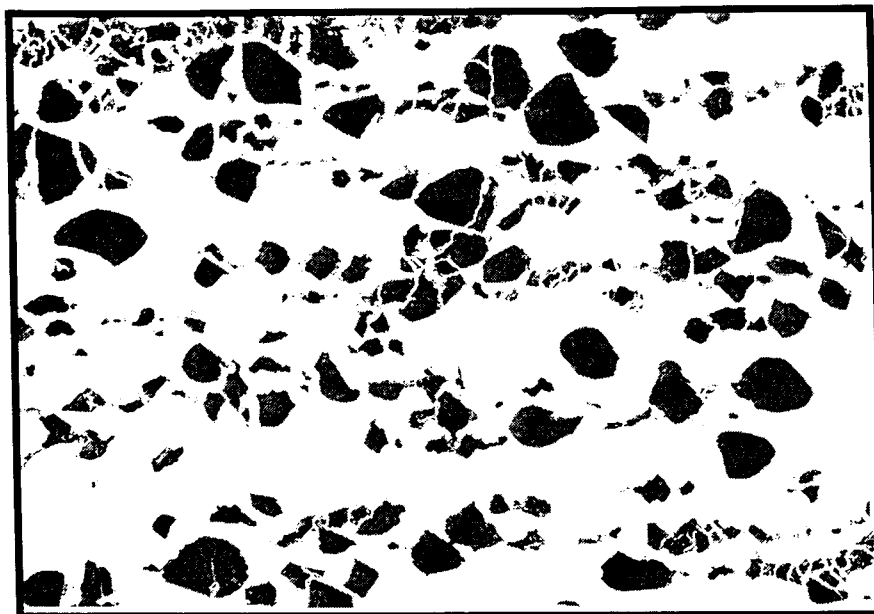


Figura 3.4 – Placa 01/95, região B4; imagem parcial, contendo apenas partículas de  $U_3O_8$  dispersas na matriz de alumínio. Aumento: 550X

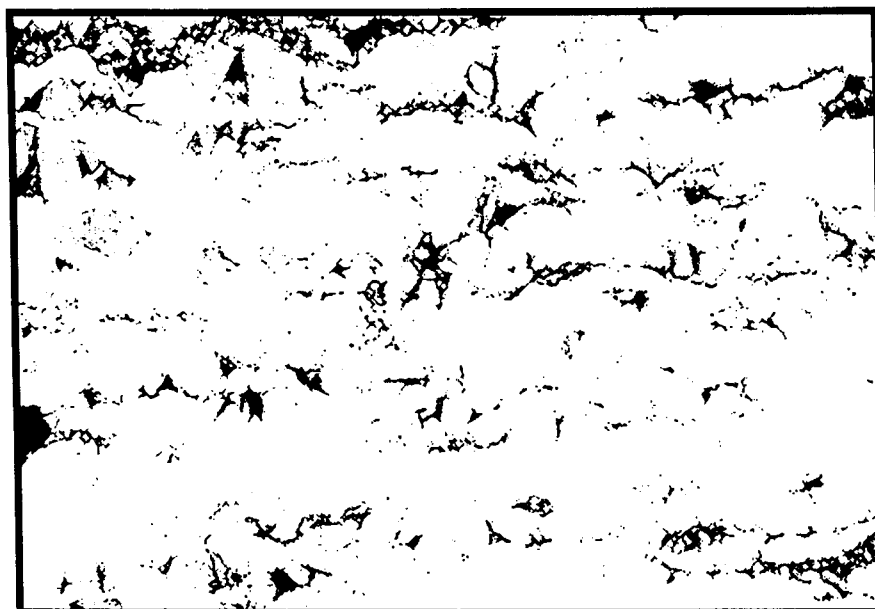


Figura 3.5 – Placa 01/95, região B4; imagem parcial, contendo apenas poros dispersos na matriz de alumínio. Aumento: 550X

#### 3.6.4 Medidas de espessura de revestimento de núcleos

As medidas de espessura de revestimento dos núcleos das placas 01/95, 05/95 e 07/95 obtidas pelo método proposto, da placa 11/95 obtida pelo método híbrido bem como da 432 obtida pelo método 1 (convencional), foram realizadas em suas regiões B, C, E e G, utilizando-se o mesmo equipamento para captura das 120 imagens plenas, um microscópio óptico Olympus modelo AH3-UMA, com analisador de imagens bidimensionais Leica.

## 4. DISCUSSÃO DE RESULTADOS

### 4.1 Obtenção do pó de $U_3O_8$

#### 4.1.1 Caracterização do pó de TCAU

O pó de TCAU utilizado neste trabalho foi fornecido com tamanho de partículas entre cerca de 2 e  $100\mu\text{m}$ , com tamanho médio igual a  $45\mu\text{m}$ <sup>[47]</sup>. A morfologia das partículas de TCAU pode ser observada na micrografia eletrônica de varredura da figura 4.1. As partículas são facetadas, e apresentam alguma regularidade de forma.

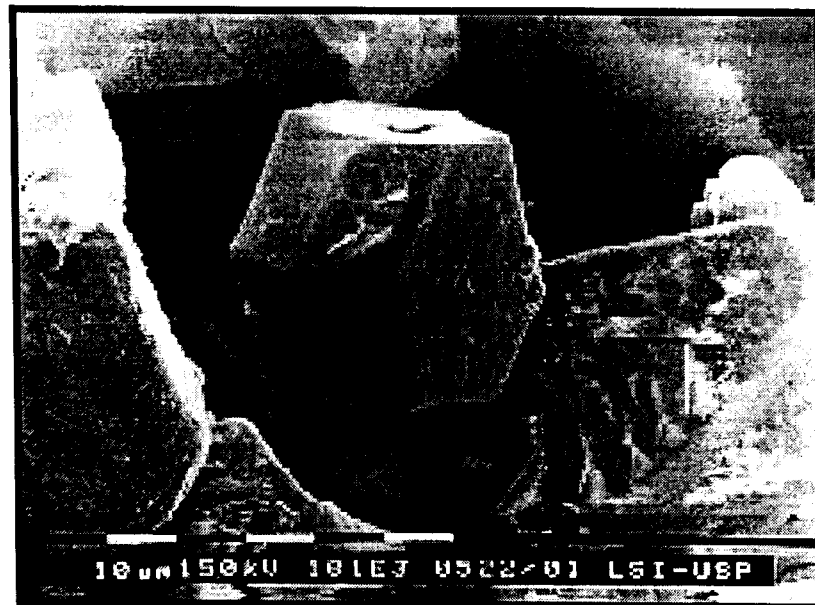


Figura 4.1 – Micrografia eletrônica de varredura do pó de TCAU.

A figura 4.2 apresenta o resultado da análise termogravimétrica do pó de TCAU. A perda de massa ocorrida em torno de  $600^\circ\text{C}$  está relacionada à formação do  $U_3O_8$ , razão pela qual esta temperatura foi escolhida como a mínima para os testes de calcinação, fato também comprovado pelo resultado da difração de raios x do pó calcinado a  $600^\circ\text{C}$  durante 3h, apresentada na figura 4.3.



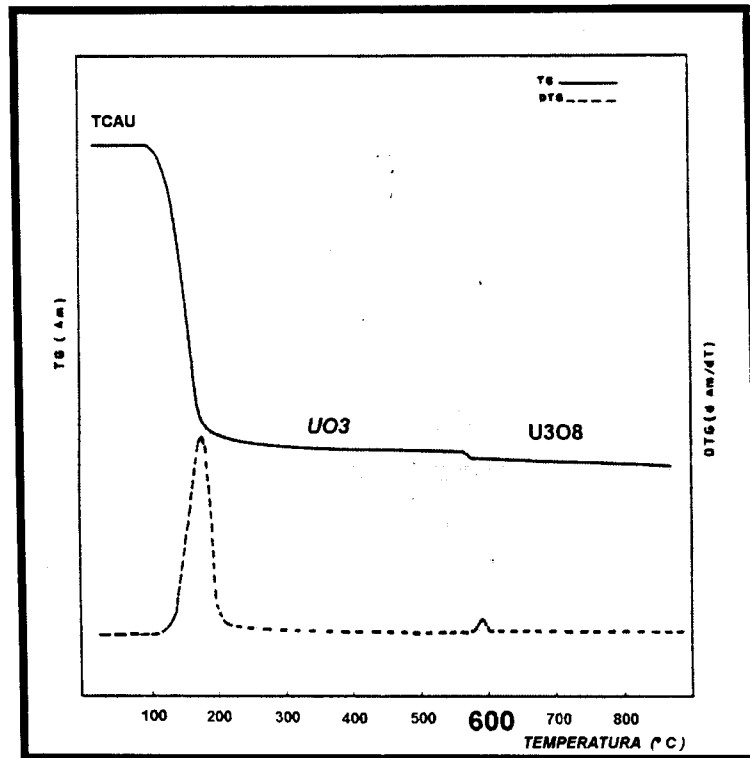


Figura 4.2 <sup>[47]</sup> – Análise termogravimétrica do pó de TCAU.

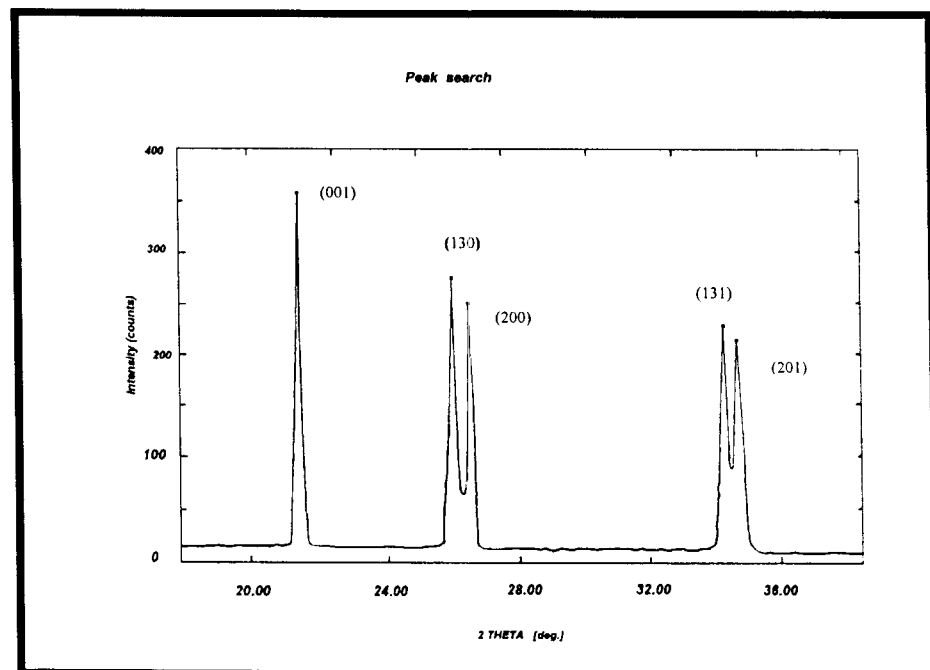


Figura 4.3 – Difração de Raios-X do pó de  $U_3O_8$  calcinado a  $600^\circ\text{C}$  - 3h.

## 4.1.2 Caracterização do pó de $U_3O_8$ calcinado e do sinterizado

### 4.1.2.1 Determinação do teor de impurezas

A tabela 4.1 apresenta resultados de teores de impurezas no  $U_3O_8$  calcinado a  $800^\circ C$  - condição de calcinação que apresentou os maiores teores de contaminantes- e no  $U_3O_8$  sinterizado, frente aos teores máximos permissíveis. A semelhança dos teores de impurezas dos dois casos indica que o processamento do  $U_3O_8$  sinterizado é adequado, por não apresentar aumento desses teores em relação ao pó calcinado, além de possuir valores abaixo dos limites máximos especificados. O único aumento significativo observado ocorreu com o Ferro, porém sem violação da especificação <sup>[46]</sup>.

Tabela 4.1 - Teores de impurezas no  $U_3O_8$  calcinado e sinterizado

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ( $\mu g/gU$ )		
	$U_3O_8$ Calcinado ( $800^\circ C/3h$ )	$U_3O_8$ Sinterizado ( $1400^\circ C/6h$ )	Teor máximo especificado
Cd	0,3	0,3	<1
B	0,1	0,1	2
P	<55	<55	250
Fe	25	120	250
Cr	20	14	200
Ni	4	6	200
Mo	2	<2	250
Zn	<10	<10	250
Si	90	90	250
Al	60	60	250
Mg + Ca	20	20	200
Mn	5	5	250
Pb	1	1	250
Sn	8	10	250
V	<3	<3	250
Cu	2	5	250
Co	<10	<10	10
F + Cl	<30	<30	350

### 4.1.2.2 Difractometria do pó de $U_3O_8$ sinterizado

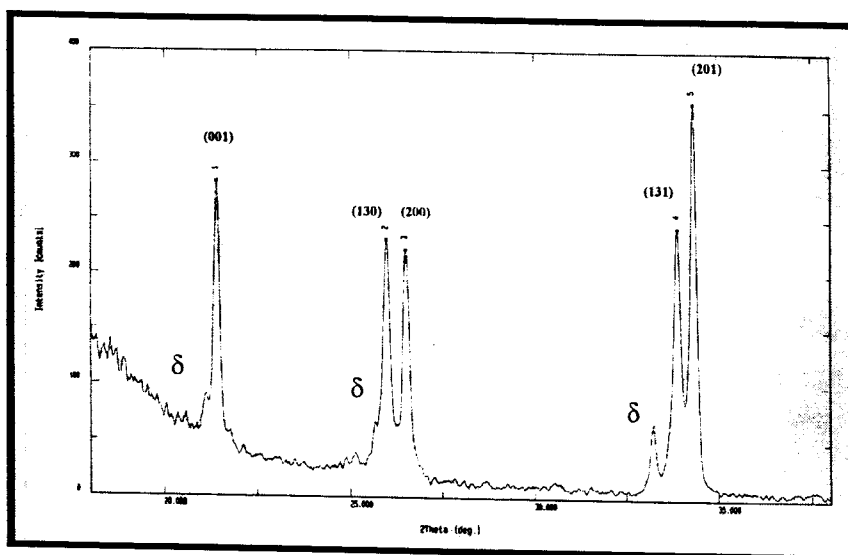


Figura 4.4—Difratograma do  $U_3O_8$  calcinado a  $600^\circ C$ -3h, sinterizado a  $1400^\circ C$ -6h.

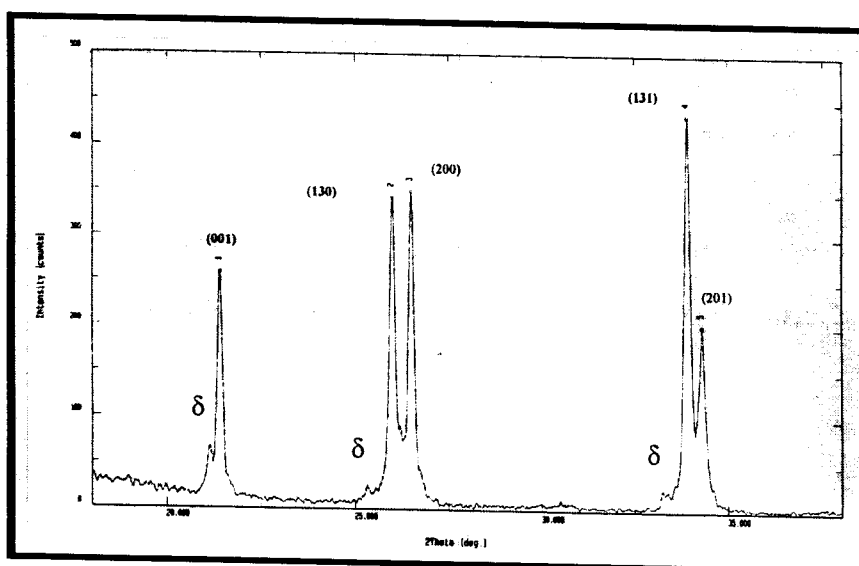


Figura 4.5—Difratograma do  $U_3O_8$  calcinado a  $700^\circ C$ -3h, sinterizado a  $1400^\circ C$ -6h.

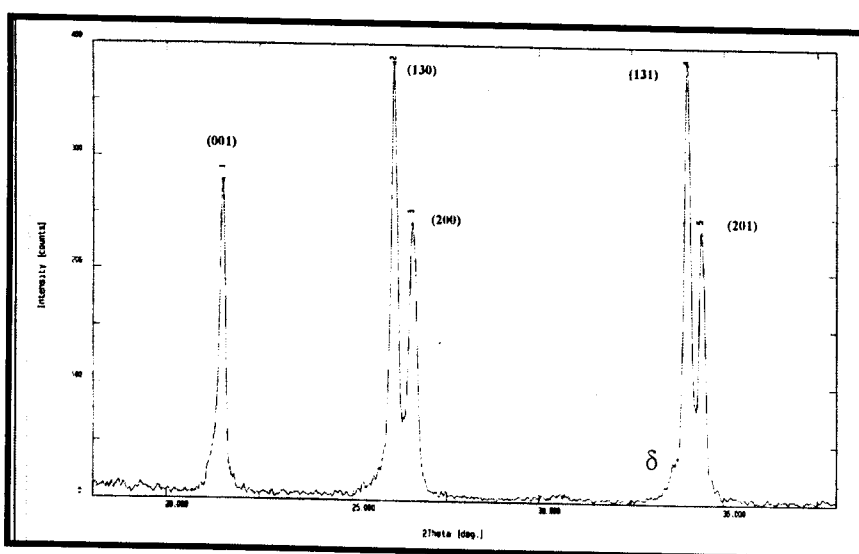


Figura 4.6—Difratograma do  $U_3O_8$  calcinado a  $800^\circ C$ -3h, sinterizado a  $1400^\circ C$ -6h.

As figuras 4.4, 4.5 e 4.6 apresentam respectivamente os difratogramas do  $U_3O_8$  calcinado a 600, 700, e 800°C-3h e sinterizado a 1400°C-6h. São diagramas típicos que comprovam a existência exclusiva do  $U_3O_8$ . Em todos os difratogramas pode ser observada a presença de um pico adicional atribuído à fase  $\delta$  do  $U_3O_8$ , à semelhança do encontrado por Leal Neto <sup>[43]</sup>. A ocorrência desta fase, entretanto, não acarreta problemas quanto ao desempenho do  $U_3O_8$  como combustível nuclear, uma vez que placas combustíveis fabricadas com o  $U_3O_8$  proveniente do método 1, contendo também esta fase, têm sido normalmente irradiadas com sucesso.

#### 4.1.2.3 Área de superfície específica do $U_3O_8$

A tabela 4.2 apresenta resultados de área de superfície específica para os pós de  $U_3O_8$  obtidos segundo os métodos proposto e convencional.

Tabela 4.2 - Área de superfície específica do pó de  $U_3O_8$  calcinado e sinterizado - métodos proposto e convencional

Área de superfície específica ( $m^2/g$ )	$U_3O_8$ de TCAU	$U_3O_8$ de DUA
Calcinado 600°C-3h	4,21	8,14
Calcinado 700°C-3h	4,01	7,91
Calcinado 800°C-3h	3,98	6,80
Calcinado 600°C-3h e sinterizado 1400°C-6h	<0,1	<0,1

A análise dos resultados mostra que os pós sinterizados provenientes quer do DUA como do TCAU possuem valores inferiores a 0,1  $m^2/g$ , atendendo às especificações vigentes para o pó de  $U_3O_8$  <sup>[46]</sup>. Podemos também observar que, para as mesmas temperaturas de calcinação, o  $U_3O_8$  proveniente do DUA é muito

mais ativo que o proveniente do TCAU. Qualquer que seja o método de obtenção do  $U_3O_8$ , a atividade do pó diminui com o aumento da temperatura de calcinação, o que, do ponto de vista deste método de caracterização, é prejudicial à sua sinterização.

#### 4.1.2.4 Microscopia eletrônica de varredura do $U_3O_8$

As micrografias abaixo referem-se aos pós de  $U_3O_8$  de TCAU calcinados nas temperaturas investigadas e sinterizados, e ao  $U_3O_8$  de DUA calcinado a  $600^\circ\text{C}$  e sinterizado a  $1400^\circ\text{C}$ , segundo o método convencional.



Figura 4.7 - M.E.V.  $U_3O_8$  de TCAU calcinado  $600^\circ\text{C}$ -3h (não classificado).



Figura 4.8 - M.E.V.  $U_3O_8$  de TCAU calcinado  $700^{\circ}C-3h$   
(não classificado).



Figura 4.9 - M.E.V.  $U_3O_8$  de TCAU calcinado  $800^{\circ}C-3h$   
(não classificado).



Figura 4.10 - M.E.V.  $U_3O_8$  de TCAU calcinado  $600^{\circ}C$ -3h, sinterizado  $1400^{\circ}C$ -6h (não classificado).

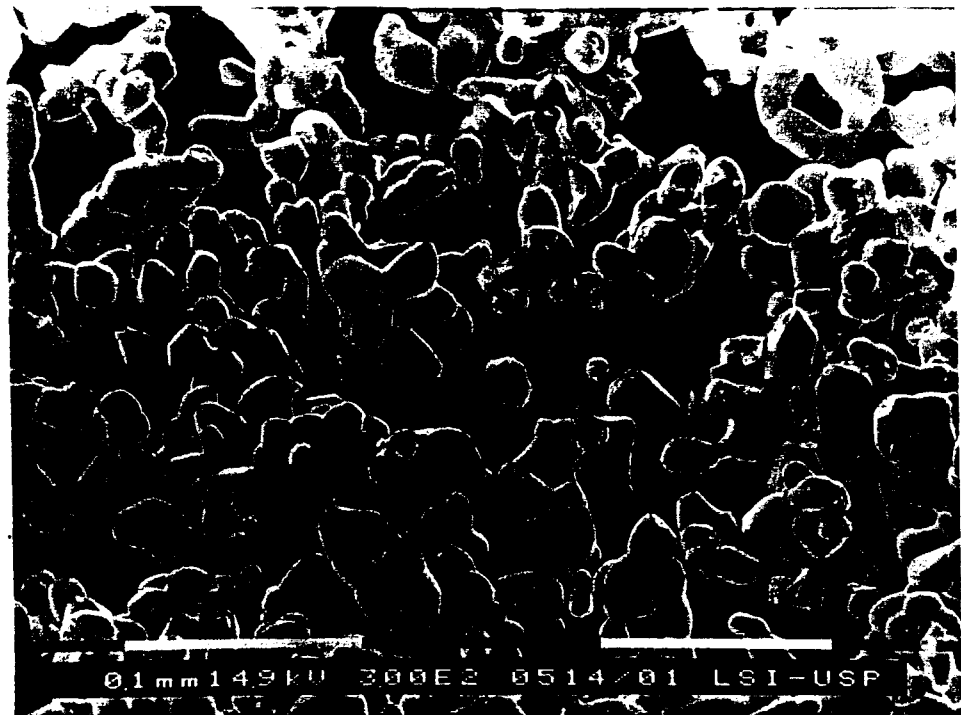


Figura 4.11 - M.E.V.  $U_3O_8$  de TCAU calcinado  $700^{\circ}C$ -3h, sinterizado  $1400^{\circ}C$ -6h (não classificado).

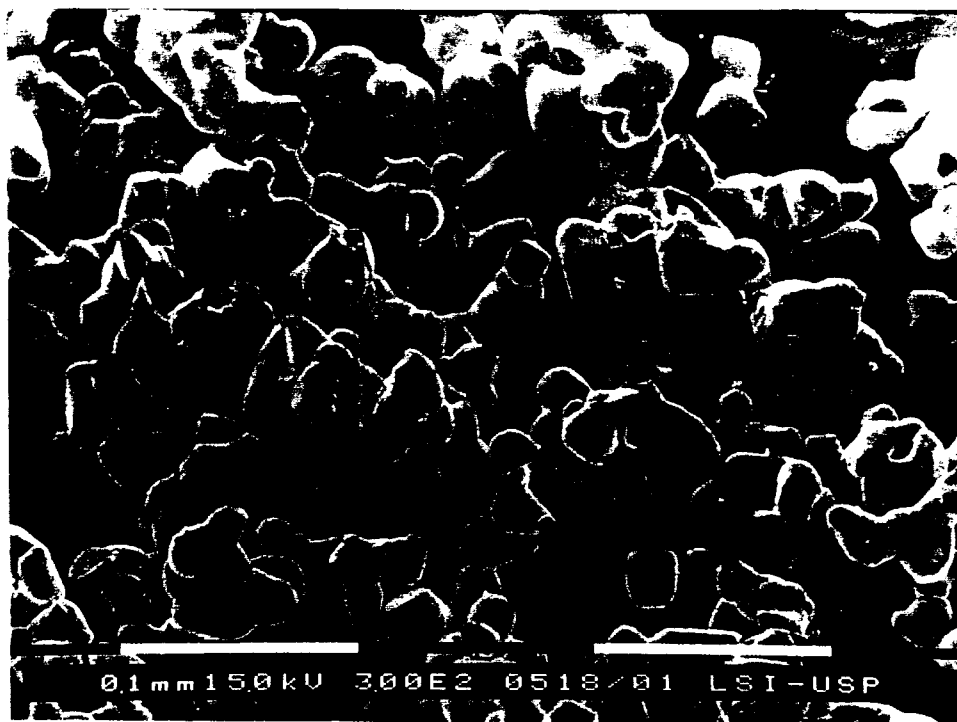


Figura 4.12 - M.E.V.  $U_3O_8$  de TCAU calcinado 800°C-3h, sinterizado 1400°C-6h (não classificado).



Figura 4.13 - M.E.V.  $U_3O_8$  de DUA calcinado 600°C-3h, sinterizado 1400°C-24h (não classificado).



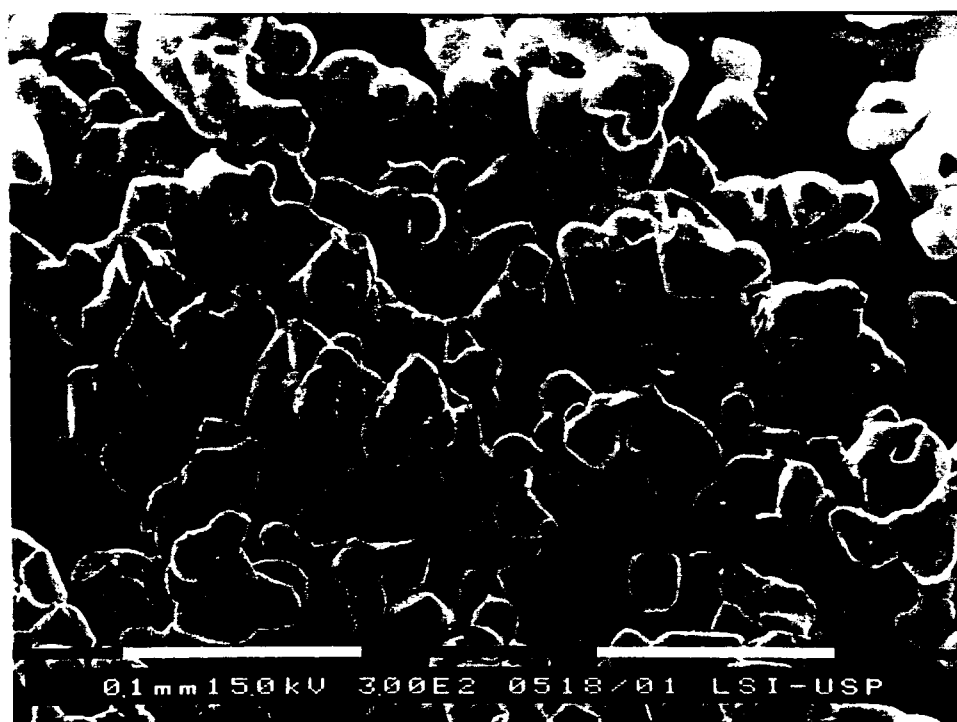


Figura 4.12 - M.E.V.  $U_3O_8$  de TCAU calcinado 800°C-3h, sinterizado 1400°C-6h (não classificado).



Figura 4.13 - M.E.V.  $U_3O_8$  de DUA calcinado 600°C-3h, sinterizado 1400°C-24h (não classificado).

De acordo com as figuras 4.7, 4.8 e 4.9, o aumento da temperatura de calcinação provocou uma diminuição de poros e trincas nas partículas, o que pôde ser comprovado com a diminuição de suas áreas de superfície específicas, conforme resultados apresentados na tabela 4.2. Já as figuras 4.10, 4.11 e 4.12 mostram que as partículas sinterizadas são na verdade constituídas por partículas menores, sinterizadas umas às outras formando pescoços. Por outro lado, as partículas sinterizadas provenientes do DUA (método convencional, figura 4.13), são mais arredondadas, fato decorrente da etapa de granulação e da própria maior atividade do  $U_3O_8$  de DUA calcinado que o de TCAU (tabela 4.2). A título de comparação, sinterizou-se por 24 horas ao invés de 6, uma dada quantidade de pó de  $U_3O_8$  calcinado a  $600^\circ\text{C}$ -3 h proveniente do TCAU. A micrografia relativa a esta condição é apresentada na figura 4.14. Observa-se que não houve qualquer alteração na morfologia e no tamanho das partículas sinterizadas.

Podemos observar também que, de acordo com as figuras 4.10, 4.11 e 4.12, o tamanho final das partículas sinterizadas de  $U_3O_8$  provenientes do TCAU independe da temperatura de calcinação.



Figura 4.14 - M.E.V.  $U_3O_8$  de TCAU calcinado  $600^\circ\text{C}$ -3h, sinterizado  $1400^\circ\text{C}$ -24h.

#### 4.1.2.5 Porosimetria de mercúrio

Das planilhas de cada ensaio, foram calculadas as respectivas densidades dos pós de  $U_3O_8$  calcinados e sinterizados, de acordo com a tabela 4.3.

Tabela 4.3 - Valores extraídos das planilhas de ensaios de porosimetria de mercúrio para cálculo de densidades dos pós de  $U_3O_8$  calcinados e sinterizados

Condição	Ws (g)	Vp (cm <sup>3</sup> )	Wpsm (g)	Wp (g)	Ym (g/cm <sup>3</sup> )	Va(cm <sup>3</sup> Hg/g amostra)	Vf(cm <sup>3</sup> Hg/g amostra)
600°C/3h	4,1530	4,1230	111,6080	68,3320	13,5438	0	0,1685
700°C/3h	4,0340	4,1230	113,4050	68,3320	13,5438	0,0010	0,1468
800°C/3h	4,1030	4,1230	114,1060	68,3070	13,5462	0,0012	0,1306
600°C/3h- 1400°C/6h	8,0470	5,2050	136,8970	73,5060	13,5462	0,0175	0,0181
700°C/3h- 1400°C/6h	11,0270	5,2050	135,4020	73,4610	13,5462	0,0107	0,0109
800°C/3h- 1400°C/6h	11,0560	5,2050	134,9350	73,4710	13,5462	0,0136	0,0139

Substituindo-se os valores acima nas equações (1) e (2) do tópico 3.5.6, teremos calculados os valores de  $D_A$  e  $D_F$ , conforme tabela 4.4.

Tabela 4.4 - Valores de  $D_A$  e  $D_F$ , em g/cm<sup>3</sup>

Condição	$D_A$ (g/cm <sup>3</sup> )	$D_F$ (g/cm <sup>3</sup> )
600°C/3h	3,3645	7,7687
700°C/3h	3,7098	8,0805
800°C/3h	3,9451	8,0593
600°C/3h-1400°C/6h	8,2229	8,2637
700°C/3h-1400°C/6h	8,2913	8,3120
800°C/3h-1400°C/6h	8,3006	8,3144

As tabelas 4.5 e 4.6 apresentam os resultados obtidos de porosimetria de pós de  $U_3O_8$  calcinados e sinterizados.

Tabela 4.5 – Resultados de porosimetria do  $U_3O_8$  calcinado

Parâmetros	Temperatura de calcinação (°C)		
	600	700	800
Densidade aparente(g/cm <sup>3</sup> )	3,36	3,71	3,95
$\frac{\text{densidade aparente}}{\text{densidade teórica}}$ (%)	40,00	44,17	47,02
Porosidade total (%)	60,00	55,83	52,98
Fração poros abertos (%)	94,59	96,81	96,20
Fração poros fechados (%)	5,41	3,19	3,80
F.V.P.A. (%) = $P_{TOT} \times F.P.A.$	56,75	54,05	50,97
F.V.P.F. (%) = $P_{TOT} \times F.P.F.$	3,25	1,78	2,01

De acordo com a tabela 4.5, o aumento da temperatura de calcinação do  $U_3O_8$  provoca um aumento de sua densidade aparente e uma redução de sua porosidade total. Porém, a redução desta porosidade envolve a evolução simultânea das porosidades aberta e fechada, que não são exclusivamente crescentes ou decrescentes. Já a tabela 4.6 apresenta para valores crescentes de temperaturas de calcinação, pós sinterizados com maiores valores de densidades aparentes e de porosidade fechada, além de menores valores de porosidade total e de porosidade aberta. Em outras palavras, o aumento da temperatura de calcinação confere ao pó sinterizado um aumento de sua densidade aparente e de sua porosidade fechada, com a conseqüente redução de sua porosidade aberta, o que, sob o ponto de vista desta técnica de caracterização, favorece a sinterização. Estes resultados não são conflitantes com os de área de superfície específica já discutidos e apresentados na tabela 4.2. Temperaturas maiores de calcinação produzem pós com menores resultados de B.E.T., já que devem propiciar com maior intensidade o início do processo de sinterização do pó ainda

durante sua calcinação. Este fato poderia ser comprovado com um ensaio de dilatométrica do T.C.A.U., indisponível durante a realização deste trabalho. Logo, os pós calcinados a temperaturas mais altas atingem maiores valores de densificação.

Tabela 4.6 – Resultados de porosimetria do  $U_3O_8$  sinterizado

Parâmetros	Temperatura de calcinação (°C)		
	600	700	800
Densidade aparente(g/cm <sup>3</sup> )	8,22	8,29	8,30
$\frac{\text{densidade aparente}}{\text{densidade teórica}}$ (%)	97,86	98,69	98,81
Porosidade total (%)	2,14	1,31	1,19
Fração poros abertos (%)	22,22	18,75	13,33
Fração poros fechados (%)	77,78	81,25	86,67
F.V.P.A. (%) = $P_{TOT} \times F.P.A.$	0,48	0,25	0,16
F.V.P.F. (%) = $P_{TOT} \times F.P.F.$	1,66	1,06	1,03

#### 4.1.2.6 Rendimentos granulométricos do $U_3O_8$ calcinado e sinterizado

As tabelas 4.7 e 4.8 fornecem os resultados de rendimentos granulométricos do pó de  $U_3O_8$  calcinado e de  $U_3O_8$  sinterizado. A análise das tabelas 4.7 e 4.8 demonstra que o teor de finos gerado na sinterização praticamente independe da temperatura de calcinação e do teor de finos gerado após esta etapa. A preocupação com o teor de finos de sinterização justifica-se, dada aos altos custos decorrentes do processo de reciclagem de um material já sinterizado e que, para seu reaproveitamento, depende de dissolução em  $HNO_3$  e posterior precipitação a partir de uma solução de Nitrato de Uranilo <sup>[47]</sup>.

Tabela 4.7 - Rendimento granulométrico  $U_3O_8$  calcinado, lote experimental

Temperatura de Calcinação (° C)	Rendimento Granulométrico (%) para tamanho de partícula		
	Maior que 177 $\mu m$	Entre 177 e 44 $\mu m$	Menor que 44 $\mu m$
600	0	72	28
700	0	58	42
800	0	40	60

Tabela 4.8- Rendimento granulométrico  $U_3O_8$  sinterizado, lote experimental

Temperatura de Calcinação (° C)	Rendimento Granulométrico (%) para tamanho de partícula		
	Maior que 88 $\mu m$	Entre 44 e 88 $\mu m$	Menor que 44 $\mu m$
600	0	72	28
700	0	68	32
800	0	68	32

Embora os resultados de porosimetria conduzam à calcinação do T.C.A.U. a 800°C/3h, a calcinação a 600°C/3h já fornece um pó de  $U_3O_8$  com densidade aparente superior aos 8,0 g/cm<sup>3</sup> especificados [31,45]. O adicional de porosidade fechada que se obtém com a calcinação a 800 °C, não reverte a escolha dessa condição. Considerando-se os demais métodos de caracterização de pós anteriormente discutidos, a escolha da condição otimizada de obtenção do pó de  $U_3O_8$  é a de calcinação a 600°C-3h e de sinterização a 1400 °C-6h, a que, além de atender aos requisitos dispostos em 2.2.4 e às especificações para o pó de  $U_3O_8$  [46], provoca menor desgaste dos fornos de calcinação e de sinterização, consome menos energia, evita o trabalho em turnos, além de conferir ao produto um rendimento granulométrico na faixa de interesse ligeiramente superior após

sinterização (tabela 4.8). O teor de finos obtido pelo método proposto após sinterização, em torno de 28% , é maior do que o obtido pelo método convencional, de 20%. Porém, o método proposto dispensa a etapa de granulação, o que representa uma enorme vantagem em termos de custos a ela associados.

Definida a condição mais adequada, processou-se o lote de comprovação, partindo-se de 6 Kg de TCAU. O pó de  $U_3O_8$  calcinado, classificado granulometricamente, forneceu 2,46Kg de pó na faixa (entre 44 e 177 $\mu$ m), 0,75Kg de finos, (menor que 44 $\mu$ m), e 0,04Kg de material recuperado via pincel de dentro da caixa de luvas. Não houve material retido na malha 80 mesh (partículas maiores que 177 $\mu$ m ), conforme apresentado na tabela 4.9.

Tabela 4.9 - Rendimento granulométrico  $U_3O_8$  calcinado 600°C-3h, lote de comprovação

MATERIAL	MASSA (Kg)	RENDIMENTO (%)
MAIOR QUE 177 $\mu$ m (+80#)	-	-
ENTRE 177E 44 $\mu$ m (-80#+325#)	2,46	76
MENOR QUE 44 $\mu$ m (-325#)	0,75	23
PERDAS	0.04	1

Os resultados obtidos de rendimentos granulométricos do  $U_3O_8$  calcinado do lote de comprovação (tabela 4.9) são ligeiramente diferentes daqueles obtidos do lote experimental (tabela 4.7). O teor de finos do lote de comprovação (23%), inferior ao do lote experimental (28%), é justificado com base numa possível maior aglomeração de suas partículas durante os 32 peneiramentos, por maiores que tenham sido os cuidados nas secagens das peneiras após a lavagem das mesmas. Os resultados obtidos de rendimentos granulométricos do  $U_3O_8$  sinterizado do lote de comprovação (tabela 4.10) praticamente reproduzem os

resultados referentes ao lote experimental (tabela 4.8), o qual apresentou 28% de finos (partículas menores que  $44\mu\text{m}$ ) frente aos 29% apresentados pelo lote de comprovação.

Tabela 4.10 –Rendimento granulométrico  $\text{U}_3\text{O}_8$  calcinado a  $600^\circ\text{C}$ -3h e sinterizado a  $1400^\circ\text{C}$ -6h, lote de comprovação

MATERIAL	MASSA (Kg)	RENDIMENTO (%)
MAIOR QUE $88\mu\text{m}$ (+170#)	-	-
ENTRE $88\mu\text{m}$ E $44\mu\text{m}$ (-170#+325#)	2,28	71
MENOR QUE $44\mu\text{m}$ (-325#)	0,93	29
PERDAS	-	-

## 4.2 Caracterização da dispersão após laminação

### 4.2.1 Radiografia de localização/final do núcleo.

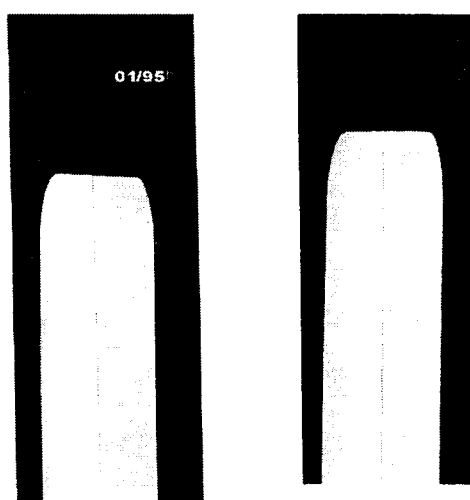


Figura 4.15 -Radiografia da placa 01/95 - condição *localização / final do núcleo*.



A figura 4.15 apresenta a radiografia da placa 01/95 na condição **localização/final do núcleo**, sendo este mostrado na região central, mais clara. Esta condição não evidencia defeitos como trincas ou "white points". A condição que possibilita esta evidência, **defeito/contaminação**, não pôde ser reproduzida neste trabalho pois não houve contraste suficiente entre as regiões do núcleo e de alumínio (moldura/revestimento). Porém, todas as placas foram aprovadas segundo o critério usualmente adotado na produção rotineira.

#### 4.2.2 Controle dimensional e densidades hidrostáticas de núcleos

A tabela 4.11 apresenta os resultados de controle dimensional e de porosidade de núcleos das 12 placas, das quais 9 obtidas pelo método 2, (proposto) e 3 pelo método híbrido, comparados aos de uma placa obtida pelo método 1 (convencional), a de nº 432. Valores de espessura média de revestimento são apresentados apenas para as placas destruídas para metalografia, em destaque na tabela 4.11.

Os resultados de *comprimento de núcleo* das 9 placas obtidas segundo o método proposto, (**01/95, 02/95, ..., 09/95**) situam-se praticamente no centro do intervalo de aceitação; os resultados das 3 placas obtidas segundo o método híbrido, (**10/95, 11/95, 12/95**) situam-se  $\frac{1}{4}$  acima do centro do intervalo de aceitação; o resultado da placa **432** obtida pelo método convencional situa-se praticamente no limite inferior do intervalo de aceitação. Verifica-se nas placas produzidas a partir do T.C.A.U. uma tendência a apresentarem maiores alongamentos quando comparadas à placa 432 produzida a partir do DUA. Porém, todos os resultados de alongamento mostram-se perfeitamente aceitáveis no processo de fabricação, atendendo às especificações.

As espessuras médias de revestimento de todas as 13 placas em suas regiões central e terminal além de estarem dentro de seus intervalos de aceitação, não apresentam qualquer tendência.

A variação observada nos valores de porosidade residual relativos aos núcleos das 13 placas investigadas é inerente ao processo de fabricação, sendo normalmente esperados valores entre 7 e 8% .

O laminador utilizado, embora atendendo satisfatoriamente a desenvolvimentos e à produção rotineira, é desprovido da precisão necessária para possibilitar alguma correlação entre os valores obtidos de espessura de revestimento, comprimento e porosidade dos núcleos laminados, principalmente após o passe de laminação a frio, quando a evolução desses parâmetros não se apresenta tão evidente.

Tabela 4.11 – Medidas de controle dimensional e de porosidade de núcleos das placas investigadas

PLACA Nº- (%) de finos	ESPESSURA MÉDIA DO REVESTIMENTO (mm)		COMPRIMEN- TO NÚCLEO (mm)	POROSIDADE RESIDUAL (% VOLUME)
	Região central	Região terminal		
<b>01/95 20%</b>	<b>0,33</b>	<b>0,29</b>	<b>601,5</b>	<b>7,18</b>
02/95 20%	-	-	599,5	7,64
03/95 20%	-	-	599,0	7,64
04/95 29%	-	-	599,0	7,41
<b>05/95 29%</b>	<b>0,35</b>	<b>0,29</b>	<b>599,5</b>	<b>7,18</b>
06/95 29%	-	-	596,0	7,20
<b>07/95 0%</b>	<b>0,35</b>	<b>0,29</b>	<b>597,5</b>	<b>7,69</b>
08/95 0%	-	-	601,5	7,64
09/95 0%	-	-	602,9	7,71
10/95 20%	-	-	604,0	7,39
<b>11/95 20%</b>	<b>0,34</b>	<b>0,29</b>	<b>605,5</b>	<b>7,23</b>
12/95 20%	-	-	605,0	7,43
<b>432 20%</b>	<b>0,35</b>	<b>0,29</b>	<b>590,5</b>	<b>7,41</b>
<b>VALOR TÍPICO</b>	<b>0,34±0,01</b>	<b>0,28±0,02</b>	<b>600 ±10</b>	<b>7,50±0,50</b>

#### 4.2.3 Distribuições volumétricas de diâmetro de partículas

A seguir, é feita a análise das distribuições volumétricas de tamanho em termos de diâmetro das partículas de  $U_3O_8$  dispersas na matriz de alumínio após a laminação.

As curvas de distribuição volumétrica de tamanhos de partículas das placas **432 (método convencional, 20% finos), 01/95, 05/95, 07/95 (método proposto, 20, 29 e 0% finos, respectivamente) e 11/95 (método híbrido, 20% finos)** plotadas na figura 4.15, foram construídas segundo planilhas geradas a partir do analisador microestrutural Quantikov<sup>[1]</sup> e estão compiladas na tabela 4.12.

Tabela 4.12 – Planilha extraída do processamento de imagens em analisador microestrutural Quantikov<sup>[1]</sup>

PLACA 432		PLACA 01/95		PLACA 05/95		PLACA 07/95		PLACA 11/95	
d (micra)	dV/V (%)	d (micra)	dV/V (%)	d (micra)	dV/V (%)	d (micra)	dV/V (%)	d (micra)	dV/V (%)
68,7	1,47	48,1	1,45	44,18	3,58	45,41	1,66	53,28	3,03
54,57	13,76	38,21	16,14	35,09	17,95	36,07	16,97	42,32	11,96
43,34	15,73	30,35	18,64	27,88	19,27	28,65	18,93	33,62	14,48
34,43	14,61	24,11	17,31	22,14	16,78	22,76	17,19	26,7	14,92
27,35	12,5	19,15	14,18	17,59	12,92	18,08	13,85	21,21	13,72
21,72	10,12	15,21	10,57	13,97	9,25	14,36	10,29	16,85	11,42
17,26	7,99	12,08	7,4	11,1	6,43	11,41	7,13	13,38	8,75
13,71	6,2	9,6	4,99	8,82	4,49	9,06	4,81	10,63	6,33
10,89	4,72	7,62	3,31	7	3,17	7,2	3,21	8,44	4,43
8,65	3,57	6,06	2,19	5,56	2,2	5,72	2,17	6,71	3,13
6,87	2,7	4,81	1,42	4,42	1,46	4,54	1,43	5,33	2,23
5,46	2,03	3,82	0,88	3,51	0,91	3,61	0,9	4,23	1,61
4,33	1,48	3,04	0,51	2,79	0,53	2,87	0,52	3,36	1,15
3,44	1,03	2,41	0,29	2,21	0,31	2,28	0,29	2,67	0,85
2,73	0,69	1,91	0,16	1,76	0,18	1,81	0,16	2,12	0,63
2,17	0,46	1,52	0,12	1,4	0,14	1,44	0,12	1,68	0,43
1,73	0,29	1,21	0,13	1,11	0,13	1,14	0,12	1,34	0,29
1,37	0,19	0,96	0,15	0,88	0,14	0,91	0,13	1,06	0,22
1,09	0,15	0,76	0,15	0,7	0,14	0,72	0,12	0,84	0,22
0,86	0,17	-	-	-	-	-	-	0,67	0,22
0,69	0,16	-	-	-	-	-	-	-	-

Curvas de distribuições Gaussianas foram ajustadas às curvas de distribuição dispostas na figura 4.16. Os diâmetros médios obtidos para cada uma das distribuições encontram-se dispostos na tabela 4.13.

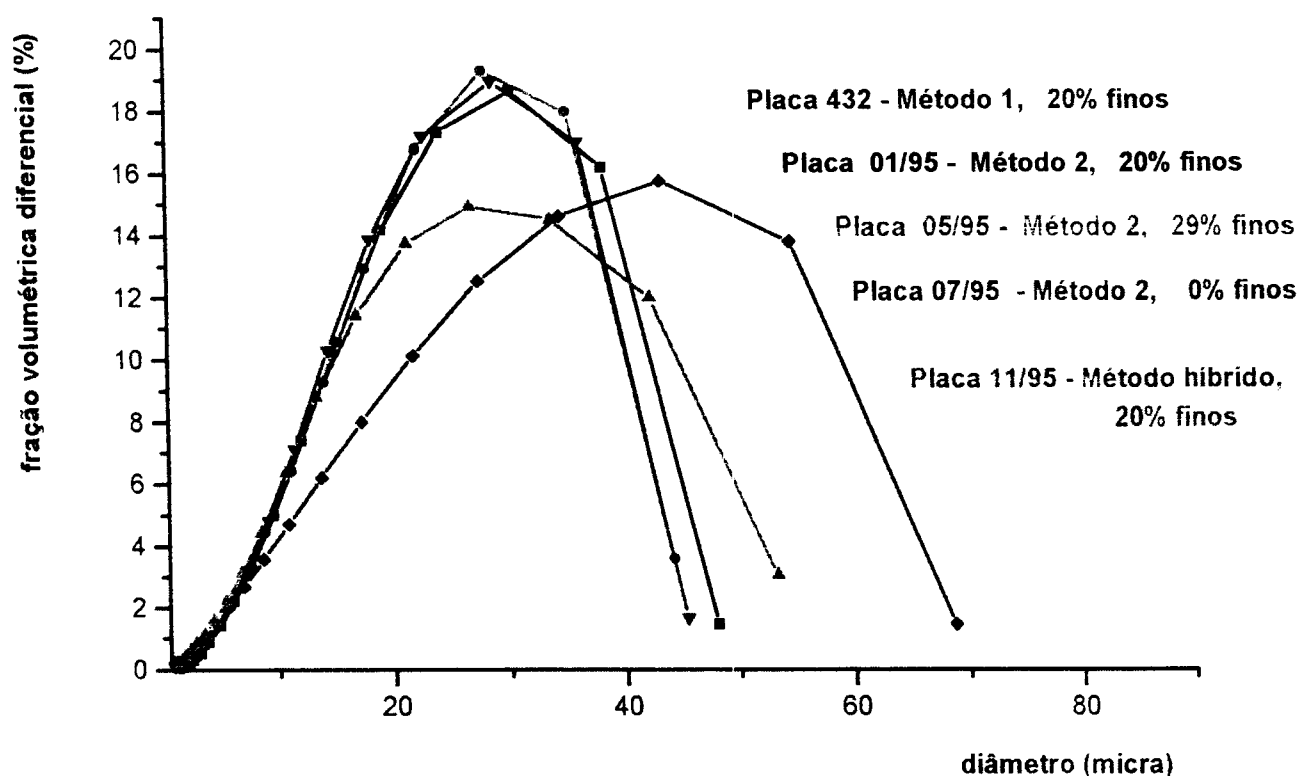


Figura 4.16 – Distribuições volumétricas de tamanho de partículas de placas combustíveis fabricadas segundo os métodos convencional, proposto e híbrido.

Tabela 4.13 – Diâmetros médios de partículas (Saltykov) – placas 432, 01/95, 05/95, 07/95 e 11/95

PLACA - CARACTERÍSTICAS	DIÂMETRO MÉDIO (MICRA)
432 – MÉTODO CONVENCIONAL (D.U.A.) - 20% FINOS	39,09
01/95 – MÉTODO PROPOSTO (T.C.A.U.) - 20% FINOS	28,33
05/95 - MÉTODO PROPOSTO (T.C.A.U.) - 29% FINOS	27,48
07/95 - MÉTODO PROPOSTO (T.C.A.U.) - 0% FINOS	27,16
11/95 - MÉTODO HÍBRIDO (T.C.A.U.) - 20% FINOS	29,84

A análise da figura **4.16** reflete um comportamento muito próximo entre as curvas relativas às placas **01/95, 05/95 e 07/95** obtidas pelo **método 2, proposto**, em termos de tamanho médio de partículas e de sua dispersão em torno da média e um comportamento não tão próximo entre este grupo de curvas e a curva relativa à placa **432** obtida pelo **método 1, convencional**. A curva relativa à placa **11/95 (método híbrido)** apresentou comportamento intermediário entre os métodos convencional e proposto.

As curvas relativas às placas **01/95, 05/95 e 07/95** obtidas pelo **método 2, proposto**, apresentam **menores diâmetros médios de partículas**, além de **menores dispersões em torno desses diâmetros**, quando comparadas às curvas relativas às placas **11/95 (método híbrido)** e, principalmente, **432 (método 1, convencional)**. Tais comportamentos podem ser explicados pela morfologia das partículas sinterizadas **antes da laminação**, obtidas segundo cada um dos três métodos. Cada partícula sinterizada de **U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> de TCAU** obtida segundo o **método proposto**, é constituída por 2 ou mais partículas menores e **de tamanhos muito próximos**, unidas entre si por pescoços, conforme apresentado na **figura 4.10**. As partículas sinterizadas de **U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> de DUA** obtidas segundo o **método convencional**, são arredondadas e desprovidas de tais pescoços, conforme apresentado na **figura 4.13**. Esforços de laminação aplicados às partículas de **U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> de TCAU (método proposto)** devem rompê-las **preferencialmente** na região desses pescoços. Este fato justifica o porquê das partículas fragmentadas resultantes apresentarem distribuição de tamanho com menor desvio, já que antes da fragmentação, quando ainda eram ligadas por pescoços, elas possuíam diâmetros muito próximos entre si.

Esforços de laminação aplicados às partículas de **U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> de DUA**, arredondadas e desprovidas de pescoços, devem fragmentá-las **aleatoriamente**, de maneira que possuam uma maior dispersão de diâmetros em torno do diâmetro médio. As figuras **4.17 a 4.21** apresentam as imagens digitalizadas da metalografia das 5 placas investigadas, onde são mostradas as partículas de **U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>** fragmentadas após a laminação, dispersas na matriz de alumínio. Nelas, podemos verificar que:

- Ao serem fragmentadas, as partículas de  $U_3O_8$  de **DUA**, apresentam-se em média maiores que as partículas de  $U_3O_8$  de **TCAU** obtidas pelos métodos **proposto e híbrido**, em concordância com a figura 4.16.

- Ao serem fragmentadas, as partículas de  $U_3O_8$  de **TCAU** obtidas pelo **método proposto** não o fazem tão **intensa e aleatoriamente** como as de  $U_3O_8$  de **TCAU** e, principalmente, como as de  $U_3O_8$  de **DUA**.

- Ao serem fragmentadas, as partículas de  $U_3O_8$  de **TCAU** obtidas pelo **método proposto** preservam a mesma morfologia apresentada por aquelas partículas unidas por pescoços antes da laminação, às quais já nos referimos, dispostas na figura 4.10.

De acordo com a figura 4.16, verifica-se que o teor inicial de finos ( 20, 29 e 0% ) presentes nas placas **01/95, 05/95 e 07/95** obtidas segundo o **método proposto**, não altera suas distribuições volumétricas de tamanho de partículas após a laminação, em concordância com as figuras 4.18, 4.19 e 4.20. Estas distribuições mostram-se apenas dependentes do método segundo o qual foi obtido o pó de  $U_3O_8$ , que determina a morfologia inicial das partículas deste pó.



Figura 4.17 – Imagem de metalografia, placa 432, região G5. Aspecto das partículas de  $U_3O_8$  de DUA fragmentadas após laminação. Aumento:550X

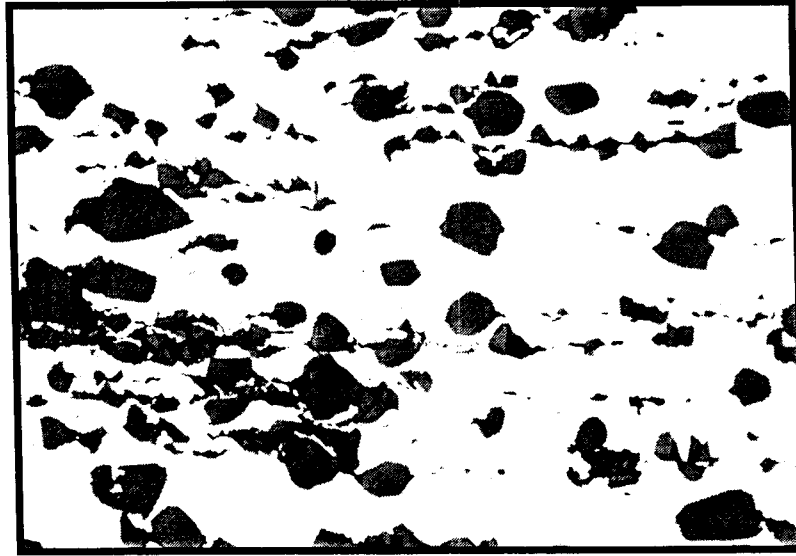


Figura 4.18 – Imagem de metalografia, placa 01/95, região G5. Aspecto das partículas de  $U_3O_8$  de TCAU fragmentadas após laminação. Aumento:550X

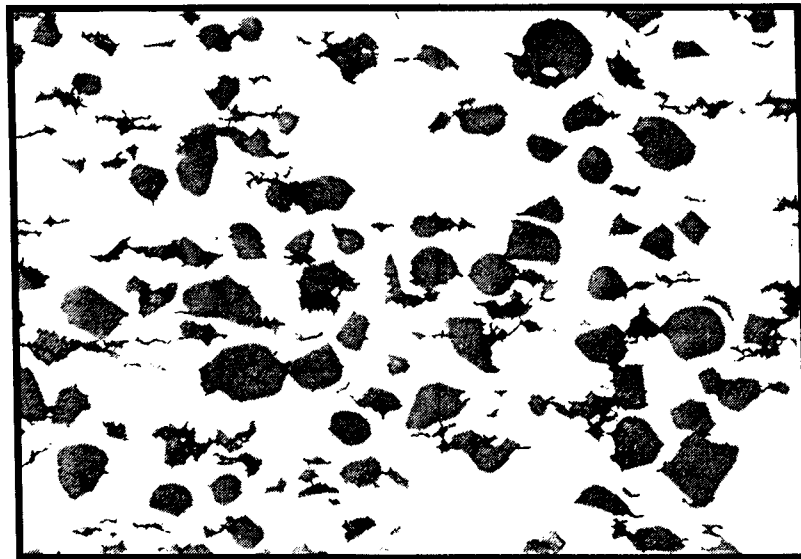


Figura 4.19 – Imagem de metalografia, placa 05/95, região G5. Aspecto das partículas de  $U_3O_8$  de TCAU fragmentadas após laminação. Aumento:550X

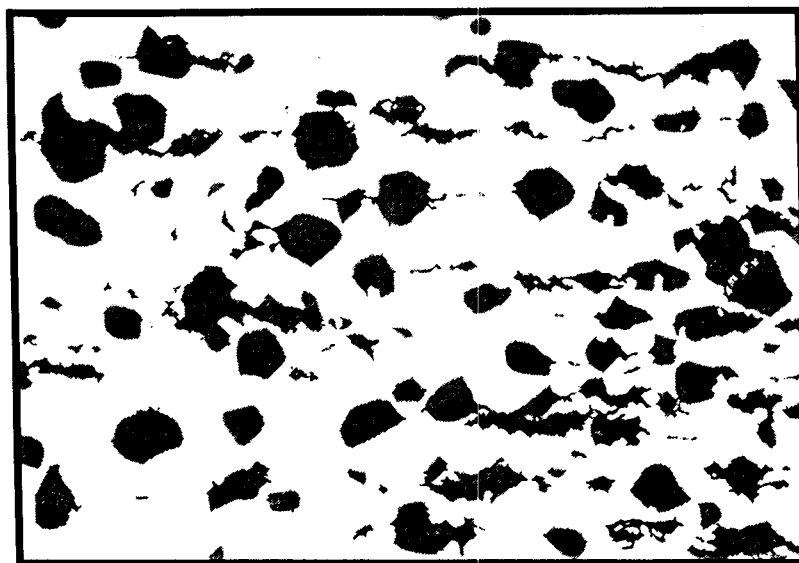


Figura 4.20 – Imagem de metalografia, placa 07/95, região G5. Aspecto das partículas de  $U_3O_8$  de TCAU fragmentadas após laminação. Aumento:550X

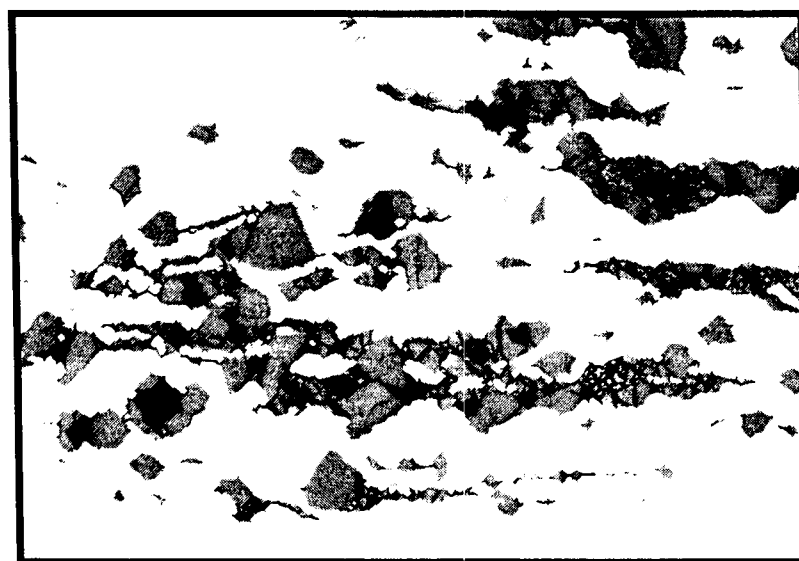


Figura 4.21 – Imagem de metalografia, placa 11/95, região G5. Aspecto das partículas de  $U_3O_8$  de TCAU fragmentadas após laminação. Aumento:550X

As diferenças até agora observadas entre os métodos de obtenção de  $U_3O_8$  *convencional*, *proposto* e *híbrido* mediante análise de suas respectivas curvas de distribuição de tamanho e de suas micrografias, são submetidas a partir



de agora a um tratamento estatístico. Tal abordagem irá no entanto, apenas fornecer subsídios que, somados aos demais resultados de caracterização, permitirão que se decida ou não pela adequação do método proposto. Assim, foram comparadas estatisticamente as 5 curvas de distribuição de tamanho de partículas apresentadas na figura 4.16. Empregou-se o método conhecido por **Análise de Variância** que testa a hipótese de que as distribuições possuem todas a mesma média ou, em nosso caso, de que as 5 placas possuem todas o mesmo diâmetro médio de partículas no espaço após laminação. Os resultados de cálculo são apresentados numa tabela chamada de **ANOVA**<sup>(49)</sup> (**Analysis of Variance**). Para a construção da tabela de ANOVA, com base na tabela 4.12, foram calculados os seguintes valores:

- Tamanho médio de partículas considerando-se todas as placas (média global dos 5 tratamentos):

- $D_G = 30,38 \mu m.$

- Soma dos quadrados dos desvios de tamanhos de partículas em cada placa (soma dos quadrados dos erros dentro de cada tratamento):

- $$SQER = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m (D_{ij} - D_j)^2 = 53.336,14 \mu m^2. \quad (7)$$

onde  $n$  é o número de observações dentro de cada tratamento e  $m$  o número de tratamentos.

- Soma dos quadrados dos desvios de tamanhos médios de partículas de cada placa em relação a todas (soma de quadrados entre tratamentos):

- $$SQTR = n \cdot \sum_{j=1}^m (D_j - D_G)^2 = 99,14 \mu m^2. \quad (8)$$

- graus de liberdade ( $V_1$  e  $V_2$ ) relativos respectivamente ao número de tratamentos ( $m=5$ ) e ao número total  $N$  de observações em todos os tratamentos ( $N = 21+19+19+19+20$ ) = 98 observações. Assim:

$$\bullet \quad \mathbf{V}_1 = m - 1 = 4 \quad (9)$$

$$\bullet \quad \mathbf{V}_2 = N - m = 93 \quad (10)$$

Podemos então, construir a tabela de ANOVA, de acordo com a tabela 4.13:

Tabela 4.13. Tabela de ANOVA - placas 432, 01/95, 05/95, 07/95 e 11/95

<i>FONTE DE VARIACÃO</i>	SOMA DE QUADRADOS	GRAUS DE LIBERDADE	VARIANCIA DO QUADRADO MÉDIO	<i>RAZÃO F</i> 0,04
ENTRE TRATAMENTOS (SQTR)	99,14	5 - 1 = 4	24,79	
DENTRO DOS TRATAMENTOS (SQER)	53.336,14	98 - 5 = 93	573,51	
TOTAL	53.435,28	97		

As razões entre as somas dos quadrados e seus correspondentes graus de liberdade ( $SQTR / \mathbf{V}_1$  e  $SQER / \mathbf{V}_2$ ) fornecem os valores de **variância entre tratamentos** e **variância dentro dos tratamentos** respectivamente. Por fim, determina-se a **Razão F**, igual à razão entre estas duas variâncias. O valor de **F resultante**, é comparado a valores tabelados de **F crítico**, para um dado nível de confiança e para os graus de liberdade  $\mathbf{V}_1$  e  $\mathbf{V}_2$ . Nestas condições, caso **F resultante** seja menor que **F crítico** tabelado, aceita-se a hipótese que as distribuições possuem todas a mesma média.

Em nosso caso, **F resultante (0,04)** é menor **F crítico tabelado (2,49)** para um nível de confiança de 95% e, deste modo, aceita-se a hipótese de que as 5 placas possuem o mesmo tamanho médio de partículas no espaço após laminação.

Assim, apesar de ser observado na figura 4.16 que a curva relativa à **placa 432** obtida pelo **método 1 (convencional)** apresente tamanho médio de partículas maior que o de todas as demais placas, sejam elas obtidas pelo

**método 2 (proposto)** ou pelo **híbrido**, estatisticamente não existe diferença entre esses valores.

Como já foi dito, esta análise do ponto de vista estatístico representa apenas um acessório à decisão final de aceitação do método proposto que, como pudemos verificar, atendeu a todos os requisitos impostos pelas especificações vigentes, tanto para o pó de  $U_3O_8$  obtido, como também para as placas combustíveis fabricadas com este pó.

Mesmo deixando-se de lado o resultado obtido do tratamento estatístico, o menor tamanho médio de partículas de  $U_3O_8$  nas placas obtidas pelo **método proposto** face às obtidas pelos métodos **híbrido** e **convencional**, não deve representar argumento para desqualificá-lo, já que não há na literatura trabalhos que indiquem a existência de especificação para tamanho de partículas físeis após a laminação das placas.

O maior teor de finos obtido pelo **método proposto (29%)** frente ao **convencional (20%)**, também não o desqualificam, já que trabalhos internacionais<sup>[48]</sup> avalizam o emprego de teores em torno de 50%, como decorrência da especificidade do processo de fabricação e dos custos envolvidos nas etapas de reciclagem.

## 5. CONCLUSÕES

**5.1** O pó de  $U_3O_8$  obtido a partir do Tricarbonato de Amônio e Uranilo segundo o método proposto, atendeu plenamente às especificações exigidas para seu emprego em combustíveis para reatores M.T.R.

**5.2** A condição de processamento preferível dentre as testadas é a de calcinação a  $600^\circ C$ -3h e sinterização a  $1400^\circ C$ -6h, pois além de satisfazer às especificações, é a que envolve menor gasto energético, evita trabalho em regime de turnos, propicia maior vida útil aos fornos de calcinação e de sinterização, além de conferir ao pó sinterizado um maior rendimento granulométrico na faixa de interesse (entre 44 e  $88 \mu m$ ). A sinterização por 24 horas não alterou a morfologia nem o tamanho das partículas do pó de  $U_3O_8$ .

**5.3** A distribuição volumétrica das partículas físeis após a laminação das 5 placas obtidas segundo os métodos convencional, proposto e híbrido, do **ponto de vista estatístico**, mostrou-se independente quer do método de obtenção, como de seu teor inicial de finos.

**5.4** Apesar das curvas de distribuição de tamanho de partículas e das respectivas micrografias refletirem um menor tamanho médio de partículas de  $U_3O_8$  nas placas obtidas pelo **método proposto**, este método não pode ser por isto desqualificado, uma vez que não existem especificações para tamanho de partículas físeis como as encontradas nas placas laminadas.

**5.5** O teor inicial de finos presente na dispersão anterior à laminação não altera a distribuição de tamanho de partículas na placa laminada. Esta distribuição mostra-se apenas dependente do método segundo o qual foi obtido o pó de  $U_3O_8$ , que determina a morfologia inicial das partículas deste pó.

## SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

1 Apesar da indicação na literatura em trabalhos internacionais de que um teor inicial de finos de até 50% é tolerado, sugere-se um teste de irradiação de uma placa produzida segundo o método proposto com os 29 % de finos inerentes ao processo, a fim de comprovarmos seu desempenho sob irradiação e, inequivocamente, a adequação do método proposto.

2 Sugere-se a fabricação de placas combustíveis segundo o método proposto, com teores de finos variando entre 0 e 100% e o estudo comparativo de suas distribuições volumétricas de tamanho de partículas, buscando-se determinar o limite para o qual ainda é válida a observação de que o teor inicial de finos não altera tais distribuições.

3 Como a sinterização por 24 horas mostrou-se ineficaz para alterar o tamanho e a morfologia das partículas do pó processado segundo o método proposto, sugere-se realizar uma sinterização a temperaturas maiores que 1400°C, comparando-se a distribuição volumétrica de partículas obtida com a relativa ao método convencional.

4 Sugere-se a continuidade do estudo das distribuições volumétricas de tamanho de poros dos núcleos laminados, em condições análogas às abordadas neste trabalho relativamente a partículas, visando-se avaliar o comportamento dos núcleos laminados do ponto de vista de retenção de produtos de fissão.

## CONSIDERAÇÕES FINAIS

1 - Pode-se afirmar que a contribuição mais significativa prestada por este trabalho está relacionada à aplicação do método de Saltykov na determinação das distribuições volumétricas de diâmetro de partículas, mediante emprego do analisador microestrutural Quantikov <sup>[1]</sup>. O tratamento estatístico de ANOVA aplicado "passo a passo", pode constituir-se em importante ferramenta a quem dele precise, nas mais diversas áreas de atuação.

2 - Quanto ao futuro do  $U_3O_8$  utilizado em combustíveis tipo placa, pode-se afirmar que a continuidade ou não do emprego do  $U_3O_8$  para a fabricação de elementos combustíveis no IPEN é uma questão de cunho estratégico, de alçada gerencial, que nos foge à decisão e ao conhecimento. Mesmo não sendo objetivo do trabalho ater-se a esta questão, com o intuito de melhor posicionar o quão promissor ainda poderá ser o emprego do  $U_3O_8$ , apresentam-se na tabela abaixo os países que, com certeza, até setembro de 1995 utilizavam este tipo de combustível.

PAÍS	REATOR	POTÊNCIA (MW)	(%) $^{235}U$	d U (gU/cm <sup>3</sup> )	FABRICANTE
ARGÉLIA	NUR	1	19,7	3,0	CNEA - ARGENTINA
BRASIL	IEA-R1m	2 → 5	20,0	1,9	IPEN-CNEN/SP - BRASIL
	ARGONAUTA	2.10 <sup>-4</sup>	19,91	1,23	IPEN-CNEN/SP - BRASIL
TAIWAN	THMER	1.10 <sup>-6</sup>	20,0	1,25	-
INDONÉSIA	GA SIWABESSY MPR	30	19,7	2,96	FEPI - INDONÉSIA
PERU	RP-10	10	17,7	2,3	NUKEM - ALEMANHA
EUA	HFBR	60	93,0	1,01	TEXAS INSTRUMENTS - EUA
	OWR	8	93	-	-
	NBSR	20	93	-	BABCOCK & WILCOX - USA
	HFIR	85	93	0,64	BABCOCK & WILCOX - USA
	UMRR	0,2	89	0,8	BABCOCK & WILCOX - USA

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - PINTO, L. C. M. **Quantikov – um analisador microestrutural para o ambiente Windows<sup>TM</sup>**. São Paulo, 1996. Tese (Doutoramento)- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- 2 – INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES. Implantação de um Centro de Processamento de Combustíveis no IPEN – Plano Diretor. Departamento do Ciclo do Combustível. Relatório Interno MC.PT.0001.97.0. São Paulo, 1997. 35p.
- 3 - INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES. Implantação de um Centro de Processamento de Combustíveis no IPEN – Plano Diretor. Departamento do Ciclo do Combustível. Relatório Interno MC.RT.0006.98.0. São Paulo, 1998. 101p.
- 4 - INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA. Reator de Pesquisas. São Paulo, 1958. (IEA-Pub-1).
- 5 - PASQUALETO, H. **Níveis de radiação na superfície livre da piscina do reator IEA-R1. São Paulo, 1978**. Dissertação (Mestrado)- Instituto de Energia Atômica (IEA-Dt-064).
- 6 - MELLO, R. E. F. **Estudo hidrotérmico do caroço do reator de piscina IEA-R1 com vistas ao aumento de potência**. São Paulo, 1970. Dissertação (Mestrado)- Escola Politécnica, USP.

- 7 - CUNNINGHAM, J. E.; BOYLE, E. J. MTR-type fuel elements. In: UNITED NATIONS. PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY: PROCEEDINGS OF THE INTERNATIONAL CONFERENCE ON...Geneva, 8-20 August, 1955. v. 9: Reactor Technology and chemical processing. New York, N.Y., 1956. P. 203-207.
- 8 - KAUFMAN, A. R. Nuclear reactor fuel elements, metalurgy and fabrication. New York, N.Y. Interscience, 1962.
- 9 - HOLDEN, A. N. Dispersions fuel elements. New York, N.Y., Gordon&Breach, 1967.
- 10 - CUNNINGHAM, J. E.; BEAVER, R. J.; THURBER, W. C.; WAUGH, R. C. Fuel dispersions in aluminum-base elements for research reactors. In: USAEC. FUEL ELEMENTS, CONFERENCE ON..., Paris, November 18-23, 1957. Oak Ridge, Tn. 1958. v. 1, p. 269-297 (TID-7546).
- 11 - SALLER, H. A. Preparation, properties and cladding of aluminum-uranium-alloys. In: UNITED NATIONS. PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY: PROCEEDINGS OF THE INTERNATIONAL CONFERENCE ON...Geneva, 8-20 August, 1955. v. 9: Reactor Technology and chemical processing. New York, N.Y., 1956. P. 214-220.
- 12 - THURBER, W. C.; BEAVER, R. J. Segregation in uranium-aluminum alloys and its effect on the fuel loading of aluminum-base fuel element. In: REACTOR FUEL MEASUREMENTS TECHNIQUES SYMPOSIUM. East Lansing, Michigan. June 18-20, 1958. Oak Ridge, Tn. 1958. P. 9-29 (TID-7560).
- 13 - LENNOX, D. H.; KELBER, C. N. Summary report on the hazards of the Argonaut reactor. Lemont Ill., Argonne National Lab., December 1956 (ANL-5647).



- 14 - KUCERA, W. J.; LEITTEN, C. F.; BEAVER, R. J. Specifications and procedures used in manufacturing  $U_3O_8$ -aluminum dispersion fuel elements for core I of the Puerto Rico Research Reactor. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1963 (ORNL-3458).
- 15 - KNIGHT, R. W.; BINNS, J.; ADAMSON Jr, G. M. Fabrication procedures for manufacturing High Flux Isotope Reactor fuel elements. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1968 (ORNL-4242).
- 16 - BEAVER, R. J.; ADAMSON Jr, G. M.; PATRIARCA, P. Procedures for fabricating aluminum-base ATR fuel elements. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1964 (ORNL-3632).
- 17 - TRAVELLI, A. Current status of the RERTR program. In: DEVELOPMENT FABRICATION AND APPLICATION OF REDUCED-ENRICHED FUELS FOR RESEARCH AND TEST REACTOR. PROCEEDINGS OF..., Argonne, Ill., 12-14 November, 1980 (CONF-801144).
- 18 - SNELGROVE, J. L.; DOMAGALA, R. F.; HOFFMAN, G. L.; WIENCEK, T. C.; COPELAND, G. L.; HOBBS, R. W.; SENN, R. L. The use of  $U_3Si_2$  dispersed in aluminum in plate-type fuel elements for research and test reactors. Argonne National Lab., Argonne, Ill., October 1987 (ANL/RERTR/TM-11).
- 19 - COPELAND, G. L.; HOBBS, R. W., HOFFMAN, G. L.; SNELGROVE, J. L. Performance of low-enriched  $U_3Si_2$ -Al dispersion fuel elements in the Oak Ridge Reserch Reactor. Argonne National Lab., Argonne, Ill., October 1987 (ANL/RERTR/TM-10).

- 20 - UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION. Safety evaluation report related to the evaluation of low-enriched uranium silicide-aluminum dispersion fuel for use in non-power reactors. United States Nuclear Regulatory Commission, July 1988 (NUREG-1313).
- 21 - NAZARÉ, S. New low enrichment dispersion fuels for research and test reactors. *Powder Met. Intern.*, v. 18, n. 3, 1986. p. 150.
- 22 - NAZARÉ, S. Low enrichment dispersion fuels for research and test reactors. *J. Nucl. Mat.*, v. 124, 1984. p. 14.
- 23 - WIENCEK, T. C.; DOMAGALA, R. F.; THRESH, U. R. Thermal compactibility studies of unirradiated uranium silicide dispersed in aluminium. *Nuclear Technology*, v. 71, 1985. p. 608.
- 24 - FERADAY, M. A.; FOO, M. T.; DAVIDSON, R. D.; WINEGAR, J. E. The thermal stability of Al-U<sub>3</sub>SiAl dispersion fuels and Al-U alloys. *Nuclear Technology*, v. 58, 1982. p. 233.
- 25 - COPELAND, G. L.; MARTIN, M. M. Fabrication of high-uranium-loaded U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al developmental fuel plates. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1980 (ORNL-TM-7607).
- 26 - BINFORD, F. T.; KNIGHT, R. W. The use of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al cermet fuel in research reactors. *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, v. 27, 1977. p. 834.
- 27 - MARTIN, M. M.; RICHT, A. E.; MARTIN, W. R. Irradiation behaviour of aluminium-base fuel dispersions. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1973 (ORNL-4856).

- 28 - FLEMING, J. D.; JOHNSON, J. W. Exothermic reactions in Al-U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> composites. In: USAEC. RESEARCH REACTOR FUEL ELEMENT. PROCEEDINGS OF A CONFERENCE..., Gatlimburg, Tn., 17-19 September, 1962. p. 649-666 (TID-7642).
- 29 - IVINS, R. O.; TESTA, F. J. Studies with aluminum U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> cermet fuel in treat. Argonne National Lab., Argonne, Ill., October 1965 (ANL-7125).
- 30 - PASTO, A. E.; COPELAND, G. L.; MARTIN, M. M. A quantitative differential thermal analysis study of the U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Al thermit reaction. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1980 (ORNL-5659).
- 31 - KUCERA, W. J.; LEITTEN Jr, C. F.; BEAVER, R. J. Specifications and procedures used in manufacturing U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Aluminum dispersion fuel elements for core I of the Puerto Rico research reactor. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1966 (ORNL-TM-1377).
- 32 - MARTIN, M.M.; WERNER, W. J.; LEITTEN Jr, C. F. Fabrication of aluminum-base irradiation tests plates. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1966 (ORNL-TM-1377).
- 33 - NOLAND, R. A.; WALKER, D. E.; HYMES, L. C. Fabrication of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Aluminium dispersion fuel elements by extrusion. In: AMERICAN SOCIETY FOR TESTING MATERIALS. Materials in Nuclear Applications, 1959. Philadelphia, Pa., 1960. p. 336-344 (ASTM special technical publication, 276).
- 34 - BERGUA, H.; FRIDDLE, R.; DIAZ, J.; BAIRD, J. Fabrication of the ISNSE fuel element for low power research reactors. In: HAUSNER, H.H.; SCHUMAR, J.F., eds. Nuclear fuel elements: proceedings of the international symposium on..., held in Columbia Univ., New York, 28-29 January, 1959. New York, N.Y., Reinhold, 1959. v. 1, p.184-92.

- 35 - KITTL, J.; MACHADO, R.E.; MAZZA, J.A.; SABATO, J.; SILBERT, I. The manufacture of fuel elements of the Argonaut type. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the 2nd international conference on...held in Geneva, 1-13 September, 1958, v.6: Basic metalurgy and fabrication fuels. New York, N.y., 1958. p.531-7.
- 36 - SANTOS, T.D.S.; HAYDT, H. M.; FREITAS, C.T. Fabricação de elementos combustíveis para o reator Argonauta, do Instituto de Engenharia Nuclear. *Metal.*, 21(90):369-76, 1965.
- 37 - WERNER, W.J.; BARKAMAN, J.R. Characterization and production of  $U_3O_8$  for the high flux isotope reactor. Oak Ridge, Tn., Oak Ridge National Lab., 1967 (ORNL-4052).
- 38 - HROVAT, M. F.; HUSCHKA, H.; KOCH, K.H.; NAZARE, S.; ONDRACEK, G. Status of fuel element technology for plate type dispersion fuels with high uranium density. In: ARGONNE NATIONAL LABORATORY. Development, fabrication and application of reduced enriched fuels for research and test reactors: proceedings of an international meeting on... held in Argonne, 12-14 November, Argonne, Ill., 1980. p.201-11 (ANL/RERTR/TM-3).
- 39 - HROVAT, M.F.; HASSEL, H, W. Recent status and future aspect of plate type fuel element technology with high uranium density at NUKEM. In: ARGONNE NATIONAL LABORATORY. Research and test reactor core conversions from HEU to LEU fuels: proceedings of international meeting on... held in Argonne, 8-10 November 1982. Argonne, Ill., s.d, p,171-82 (ANL/RERTR/TM-4).
- 40 - HROVAT, M.; HUSCHKA, H.; KOCH, K.H.; RACHOR, L. The status of fuel element technology for plate-type dispersion fuels with high uranium density. *Trans. Am. Nucl.Soc.*, 40:267-9, 1982.

- 41 - WEHNER, E.; BOERNER, P.; KOCH, K.H. Series production of MTR fuel elements with low-enriched uranium. In: NUCLEAR TECHNOLOGY: annual meeting on...held in Karlsruhe, 2-4 June, 1987. s.n.t. p.759-62.
- 42 - BOERO, N.; CELORA, J.; PARODI, C.; MARAJOFSKY, A.; PONIEMAN, G.; KELLNER, M. Analisis de la produccion de polvos de  $U_3O_8$  para placas combustibles de bajo enriquecimiento. 1989. (Peprint).
- 43 - LEAL NETO, R.M. **Estudo de processos de obtenção de pó de  $U_3O_8$  empregado em elementos combustíveis do tipo M.T.R.** São Paulo, 1989. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- 44 - PERROTA, J. A.; MARRA NETO, A.; DURAZZO, M ; SOUZA, J.A.B.; FRAJNDLICH, R. Irradiation Experience of Ipen Fuel at IEA-R1 Research Reactor. Proceedings of the 21<sup>th</sup> International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR), October 18-23, 1998, São Paulo, Br.
- 45 - CINTRA, S.; GENTILE, E.; NISHIOKA, I.; ABRÃO, M.; AMBROSIO FILHO, F. Análise de variáveis do processo de fabricação de placas com núcleos de dispersões Al –  $U_3O_8$ . *Metalurgia* . 26 (146) : 31 : 43 :1970.
- 46 - INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES.  
**Especificação do pó de  $U_3O_8$  para a placa combustível do elemento combustível padrão do Reator IEA-R1.** fev. 09, 1988 (R19-IPN-213PR-4ee-001).
- 47 - SANTOS, L. R. **Unidade piloto de obtenção do tricarbonato de amônio e urânio.** São Paulo: 1989. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

- 48 - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Standardization OF SPECIFICATIONS AND INSPECTION PROCEDURES FOR LEU PLATE-TYPE RESEARCH REACTOR FUELS.** Apr. 16-18, 1986 (IAEA-TECDOC-467).
- 49 – DOWNING, D.; CLARK, J. **Business statistics.** Hauppauge, New York, 1992.
- 50 – FIGUEREDO, A. M. **Comportamento Mecânico de Cermets  $U_3O_8$ -Al.** São Paulo, 1982. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
51. SAMOILOV, A.G.; KASHTANOV, A.1.; VOLKOV, V.S. **Dispersionfuel Nuclear Reactor Elements.** Jerusalem IPST, 1968.
- 52 – DURAZZO, M. **Corrosão de Placas Combustíveis tipo MTR contendo Núcleos de Cermets de  $U_3O_8$ -Al.** São Paulo: 1985. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- 53 – RICHT, A.E.; LEITTEN, C.F.; BEAVER, R. J. **Radiation Performance and Induced Transformations in Aluminium-Base Fuels.** Sept.1962. (TID 7642, Research Reactor Fuel Element Conference).
- 54 - LEITTEN, C.F., HOBSON, D.O. **Characterization of  $U_3O_8$  Dispersions in Aluminium.** Feb. 1967 (ORNL-TM-1692).
- 55 - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **The recovery of uranium: proceedings of a symposium on ...** held in São Paulo. Aug. 17-21, 1971.

56 – VOLLATH, D. ; WEDEMEYER, H. ***Uranium Dioxide, UO<sub>2</sub>, Preparation and Crystallographic Properties***. In: KEIN, R. ; KELLER, C., eds. *U - Uranium*, 8.ed. Berlin, 1984. (Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry, vol. 55, suppl.C4).

57 - CANADA. Vietzke, H.; Ploger, F.; Wegner, K.; Pirk, H. ***Method of preparing uranium dioxide powder***. CA Pat. 933.336 Sep. 11, 1973.