



**ESTUDO EXPERIMENTAL DAS PRINCIPAIS VARIÁVEIS
PARA A PRODUÇÃO DE PASTILHAS DE UO_2 PARA O
REATOR SUB-CRÍTICO "RE-SUCO"**

*THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS, RICHARD M. BIDWELL,
CLAUER TRENCH DE FREITAS, HELITON M. HAYDT e
PAULO SERGIO C. PEREIRA DA SILVA*

Publicação IEA N.º 82

Dezembro — 1964

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

ESTUDO EXPERIMENTAL DAS PRINCIPAIS VARIÁVEIS PARA A PRODUÇÃO
DE PASTILHAS DE ^{235}U PARA O REATOR SUB-CRÍTICO "RE-SUCO"

por

Tharcisio D. de Souza Santos, Richard M. Bidwell, Clauer
Trench de Freitas, Heliton M. Haydt, Paulo Sergio C. Pereira
da Silva

DIVISÃO DE METALURGIA NUCLEAR
INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
São Paulo - Brasil

Publicação IEA Nº 82
Dezembro 1964

Separata do A.B.M. - Boletim da Associação Brasileira de
Metais - Nº 85 - Vol. 20.

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Marcello Damy de Souza Santos

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof. Luiz Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof. José Moura Gonçalves

Prof. Francisco João Humberto Maffei

Prof. Rui Ribeiro Franco

Prof. Theodoreto H.I. de Arruda Souto

} pela USP

} pela CNEN

Divisões Didático-Científicas:

Div. de Física Nuclear: Prof. Marcello D.S. Santos

Div. de Física de Reatores: Prof. Paulo Saraiva de Toledo

Div. de Engenharia Nuclear: Prof. Luiz Cintra do Prado

Div. de Radioquímica: Prof. Fausto Walter de Lima

Div. de Radiobiologia: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Div. de Metalurgia Nuclear: Prof. Tharcisio D.Souza Santos

Div. de Engenharia Química: Prof. Pawel Krumholz

RESUMEN

La División de Metalurgia Nuclear del Instituto de Energía Atómica, realizó un extenso programa de estudios experimentales con miras a determinar la influencia de las principales variables que interesan al programa de producción de cerca de 5.000 pastilhas de UO_2 de 40 mm de diámetro, a ser empleados en la construcción del reactor subcrítico "Re-Suco" que actualmente se halla en construcción en el Instituto de Energía Atómica. El programa fue establecido de forma a permitir el proyecto y construcción de instalaciones que, con la menor inversión y menores gastos de operación, pudiesen fabricar las referidas pastillas. En esta contribución son presentados los resultados relativos a: 1) temperatura de calcinación del diuranato de amonio; 2) tiempo y temperatura de reducción en hidrógeno, tanto del diuranato de amonio como del U_3O_8 obtenidos a diversas temperaturas; 3) condiciones de molido del UO_2 , no estequiométrico, obtenido; 4) correlación entre las densidades de los polvos y su compactabilidad; 5) influencia de agentes aglomerantes sobre la compactabilidad; 6) pre-compactación, inclusive influencia de la presión de precompactación; 7) sinterización, cuando a los efectos de tiempo y temperatura; y 8) determinación de las velocidades máximas de seguridad en el calentamiento y enfiamento de las pastilhas.

SOMMAIRE

La Division de Métallurgie Nucléaire de l'Instituto de Energia Atômica a réalisé un large programme d'études expérimentales afin de déterminer l'influence des principales variables intervenant dans la production d'environ 5000 pastilles de UO_2 de 40 mm utilisées comme combustibles du futur du réacteur sous critique "RE-SUCO" actuellement en construction à l'Instituto de Energia Atômica.

Le programme fut établi de façon à étudier et construire une installation pouvant fabriquer les pastilles et ceci, avec un minimum de dépense.

On présente dans ce rapport les résultats relatifs à:

- 1) température de calcination du diuranate d'ammonium;
- 2) temps et température de réduction par l'hydrogène soit du diuranate d'ammonium, soit du UO_2 obtenus à différentes températures;
- 3) conditions de broyage du UO_2 obtenu non stoechiométriquement;
- 4) relation entre la densité des poudres et sa propriété de compactage;
- 5) influence des agents agglomérants sur la propriété de compactage;
- 6) pré-compactage et influence de la pression de pré-compactage;
- 7) frittage, quant aux effets de pression et température;
- 8) détermination des vitesses maximum de sécurité pendant le chauffage et le refroidissement des pastilles.

ABSTRACT

The Nuclear Metallurgy Division of the Instituto de Energia Atômica carried out an extense program of experimental studies in order to determine the influence of the principal variables related to the production program of about 5000 UO_2 pellets of 40 mm in diameter to be used at the "Re-Suco" sub-critical reactor, under construction at the Instituto de Energia Atômica. The program was established to assure the minimum capital investment and low fabricating costs. In this paper are presented the results related to: 1) calcining temperature of ammonium diuranate; 2) reduction time and temperature in H_2 of both ammonium diuranate and U_3O_8 produced at different temperatures; 3) milling conditions of stoichiometric UO_2 ; 4) relation between the density of the powders and their compactability; 5) influence of binders on the compactability; 6) pre-pressing, including the influence of the pre-pressing pressure; 7) sintering variables: time and temperature; and 8) determination of the maximum safe rates during heating and cooling of the pellets.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE METAIS

ESTUDO EXPERIMENTAL DAS PRINCIPAIS
VARIÁVEIS PARA A PRODUÇÃO DE
PASTILHAS DE UO_2 PARA O REATOR
SUB-CRÍTICO "RE-SUCO"

por

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS RICHARD M. BIDWELL
CLAUER TRENCH DE FREITAS HELITON M. HAYDT
PAULO SERGIO C. PEREIRA DA SILVA



Separata do A B M
BOLETIM DA ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE METAIS
N.º 85 — Vol. 20

1964
SÃO PAULO — BRASIL

ESTUDO EXPERIMENTAL DAS PRINCIPAIS VARIÁVEIS PARA A PRODUÇÃO DE PASTILHAS DE UO_2 PARA O REATOR SUB-CRÍTICO "RE-SUCO" (1)

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS (2) RICHARD M. BIDWELL (3)
CLAUER TRENCH DE FREITAS (4) HELITON M. HAYDT (4)
PAULO SERGIO C. PEREIRA DA SILVA (5)

RESUMO

A Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica realizou um extenso programa de estudos experimentais visando determinar a influência das principais variáveis que interessam ao programa de produção de cerca de 5.000 pastilhas de UO_2 , de 40 mm de diâmetro, a serem empregadas na construção do reator sub-crítico "Re-Suco" que presentemente se acha em construção no Instituto de Energia Atômica. O programa foi estabelecido de forma a se poder projetar e construir instalação que, com o menor investimento e menores despesas de operação, pudesse fabricar as referidas pastilhas. Nesta contribuição são apresentados os resultados relativos a: 1) temperatura de calcinação do diuranato de amônio; 2) tempo e temperatura de redução sob hidrogênio, tanto de diuranato de amônio como de UO_3 , obtido a diversas temperaturas; 3) condições de moagem do UO_2 não-estequiométrico obtido; 4) correlação entre a densidade dos pós e sua compactabilidade; 5) influência de agentes aglomerantes sobre a compactabilidade; 6) pre-compactação, inclusive influência da pressão de pre-compactação; 7) sinterização, quanto aos efeitos de tempo e de temperatura; e 8) determinação das velocidades máximas de segurança no aquecimento e no resfriamento das pastilhas.

- (1) Trabalho apresentado ao XVIII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; C. T. n.º 540; Belo Horizonte, 15 a 20 de julho de 1963.
- (2) Membro da ABM; do Instituto de Pesquisas Tecnológicas, presentemente com funções de Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo.
- (3) Membro da ABM; Consultor da Agência Internacional de Energia Atômica junto à Comissão Nacional de Energia Nuclear, Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo. Do "Los Alamos Scientific Laboratory", Los Alamos, New Mexico, Estados Unidos.
- (4) Membro da ABM; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo.
- (5) Membro da ABM; Divisão de Metalurgia, Instituto de Pesquisas Tecnológicas; anteriormente, na Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo.

1. INTRODUÇÃO

O reator sub-crítico de óxido de urânio "Re-Suco", atualmente em adiantado estado de construção no Instituto de Energia Atômica, utilizará pastilhas de UO_2 de cêrca de 40 mm de diâmetro confinadas em tubo de liga 1100 de alumínio.

Os cálculos de otimização efetuados pelos técnicos da Divisão de Engenharia de Reatores do IEA mostraram que o mínimo de massa de pastilhas corresponde à densidade de $7,5 \text{ g/cm}^3$. A fig. 1 mostra a influência da densidade das pastilhas sôbre a massa total necessária de UO_2 .

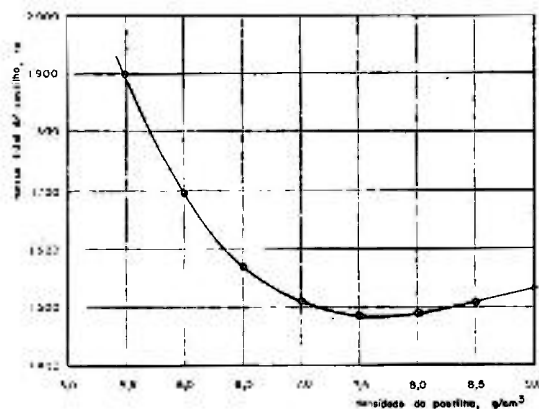


Fig. 1 — Resultados dos cálculos de otimização. Influência da densidade das pastilhas de 40,15 mm de diâmetro de UO_2 sôbre a massa total de UO_2 necessária.

Tratava-se assim de estudar experimentalmente a influência das variáveis que permitissem a produção mais econômica, tanto do ponto de vista de investimento como de custo de produção, de cêrca de 1.550 kg de pastilhas de $6,0 \pm 0,1 \text{ g/cm}^3$ de densidade.

Dentre as diversas soluções que poderiam ser adotadas para a produção dessas pastilhas, dever-se-ia ainda preferir aquelas que não viessem a causar dificuldades especiais no reprocessamento ulterior do material. Nêsse sentido deveriam ser reduzidas ao mínimo as adições de aglomerantes e de outros agentes que contribuem para facilitar a sinterização, uma vez que os teores residuais desses agentes dificultariam de alguma maneira o tratamento posterior, quando êste vier a ser feito. Não obstante foram estudadas as influências de alguns aglomerantes sôbre as propriedades das pastilhas não só para fins comparativos como

por constituir essa a técnica usualmente adotada em pastilhas sinterizadas a elevadas densidades.

Os estudos experimentais resumidos nesta contribuição foram realizados a partir de meados de 1962, inicialmente nas instalações da Divisão de Metalurgia do Instituto de Pesquisas Tecnológicas, e depois, nas da Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, após terem sido projetadas, construídas e montadas as novas unidades, quase todas tendo em vista o programa de produção mencionado.

2. PROGRAMAÇÃO DOS ESTUDOS EXPERIMENTAIS

A matéria prima utilizada em todos os estudos adiante descritos é o diuranato de amônio, produzido no Instituto de Energia Atômica em instalação piloto, a partir de uranato de sódio decorrente do aproveitamento do urânio contido em monazita pela Orquima S.A. para a Comissão Nacional de Energia Nuclear. Esse diuranato de amônio é de elevada pureza nuclear, contendo entretanto proporções variáveis de sulfato, resultante das condições de precipitação.

O programa de estudos experimentais abrangeu as seguintes fases principais do processo de produção de pastilhas a partir daquele sal:

- a) estudo das condições de redução;
- b) condicionamento das misturas;
- c) caracterização das misturas do ponto de vista das suas propriedades de compactabilidade;
- d) estudo das condições de compactação, inclusive por meio de pre-compactação; e
- e) sinterização das pastilhas sob atmosfera de hidrogênio e de argônio, para a determinação das temperaturas e tempos de sinterização, bem como das velocidades máximas de aquecimento e de resfriamento das pastilhas.

No que se refere às condições de redução, interessava particularmente determinar previamente as condições de calcinação para dissociação do sulfato residual, visando não só baixar a concentração de H_2S nos gases do forno de redução como aumentar a densidade aparente do pó de UO_2 não estequiométrico obtido. De outro lado, importava também contornar a grande piroforicidade constatada no UO_2 obtido por redução direta do diuranato de amônio. Muito embora tenha sido desenvolvido método relativamente simples para controlar essa excessiva reatividade ao ar

do UO_2 reduzido, julgou-se preferível abordar o problema para diminuir a importância e, possivelmente, eliminar essa etapa do processo.

O condicionamento da carga de UO_2 para as operações subsequentes mostrou constituir uma das etapas mais importantes do processo, do ponto de vista de facilitar a compactação e a sinterização, reduzindo em consequência o custo de produção. Por essa razão, foi investigada cuidadosamente, tanto através do controle da granulometria inicial do UO_2 , como por meio dos detalhes da moagem e mistura, da relação da carga de bolas para a carga de pó, ou da relação da carga de barras, como de tempo de mistura, como ainda quanto ao tipo do revestimento do moinho. Prestou-se particular atenção à reprodutibilidade dos resultados de condicionamento, naturalmente de grande importância para os resultados da compactação.

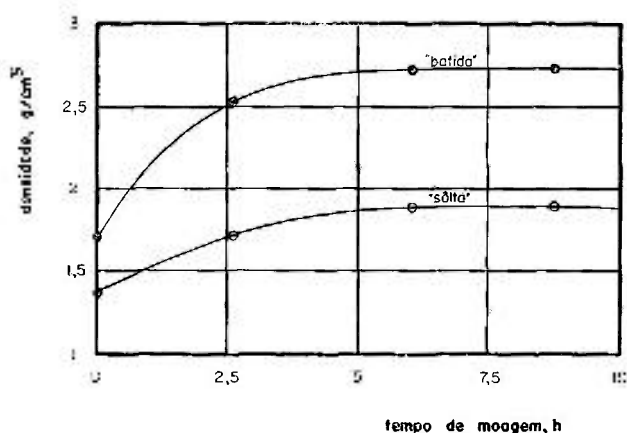


Fig. 2 — Influência do tempo de moagem sobre as densidades "sôlta" e "batida". Meio de moagem: barras de aço de 9,5 mm de diâmetro.

A caracterização das misturas do ponto de vista de seu comportamento quanto à sua compactabilidade constituiu difícil problema, uma vez que não se dispõe ainda no país de meios para a determinação experimental da superfície específica dos pós de UO_2 , índice que, juntamente com o desvio da estequiometria, parecem constituir os melhores índices para julgar do comportamento de UO_2 para fins cerâmicos, principalmente para pastilhas de elevada densidade. Mostraram os resultados obtidos que, na falta desses meios, os valores da densidade aparente da mistura condicionada, através dos índices "densidade sôlta", "densidade batida" e "densidade limite", constituíam meios bastante eficazes para caracterizar as cargas a serem compactadas.

As condições de compactação foram pormenorizadamente investigadas, estudando-se inicialmente a influência da geometria da matriz. Convém recordar aqui que quase todos os dados experimentais existentes na ampla literatura consultada, muitos dos quais indicados na extensa bibliografia revista por Wilkinson¹ e por Brill², se referem a pastilhas de diâmetros pequenos, geralmente de 5 a 8 mm. Cêdo verificou-se que o aumento do diâmetro das pastilhas causava dificuldades novas nas pastilhas quanto a trincas depois da sinterização. Os estudos experimentais foram feitos inicialmente em matrizes para pastilhas de cêrca de 10 mm, depois de cêrca de 22 mm e finalmente nas matrizes de 40 mm de diâmetro. Desde o início dos estudos experimentais, tiveram os auto-

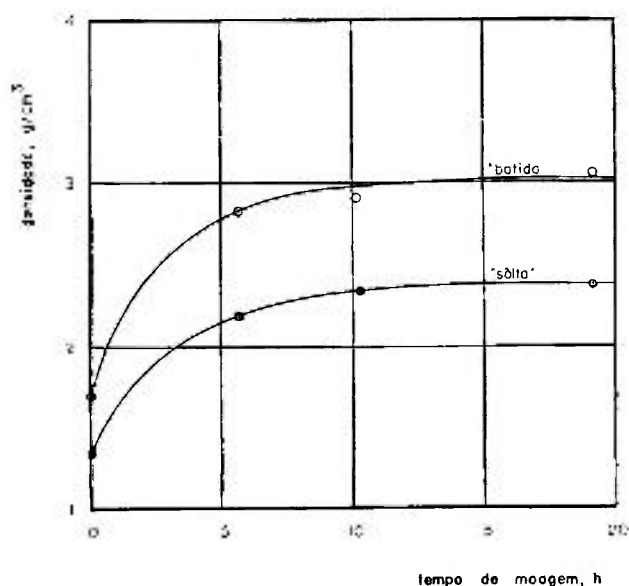


Fig. 3 -- Influência do tempo de moagem sobre as densidades "sôlta" e "batida". Meio de moagem: barras de aço de 19 mm de diâmetro. O pó utilizado é o mesmo do referente aos resultados da fig. 2.

res a preocupação de utilizar baixas pressões de compactação, o que contribui de forma acentuada para a economia do processo de fabricação das pastilhas, seja pela diminuição do investimento nas prensas, seja pela drástica redução do desgaste das matrizes. Estudaram também os autores pormenorizadamente as condições de pre-compactação, um dos meios eficazes para aumentar a compactabilidade dos pós.

Finalmente, as condições de sinterização (atmosfera, tempo, temperatura e velocidade de aquecimento e de resfriamento), pela sua importância, foram investigadas através de muitas dezenas de operações, nas quais se procuraram isolar a influência de cada uma das variáveis anteriores do processo. Constituindo provavelmente a etapa mais onerosa do processo de fabricação de pastilhas, procurou-se orientar os estudos experimentais da sinterização no sentido de se simplificar ao máximo essa operação, para que não viesse constituir um gargalo nas operações posteriores de produção das pastilhas para o reator "Re-Suco", seja em capacidade de produção, seja em custo de fabricação.

Para não alongar em demasia esta contribuição, os autores examinam: a seguir os principais estudos efetuados de acordo com o programa descrito em suas linhas gerais.

3. RESULTADOS EXPERIMENTAIS

3.1 — Redução a UO_2 não-estequiométrico

Visando baixar a menos de 2 ppm o teor de S residual no material reduzido e evitar a piroforicidade dos pós, a redução é feita a partir de cargas de U_3O_8 , obtido este por dissociação do diuranato de amônio ao ar à temperatura de 850°C . A operação é realizada em fornos de mufla, a carga de diuranato de amônio sendo carregada em bandejas de aço inoxidável.

A redução é realizada em fornos tubulares dotados de duas zonas de controle independente de temperatura, sob atmosfera

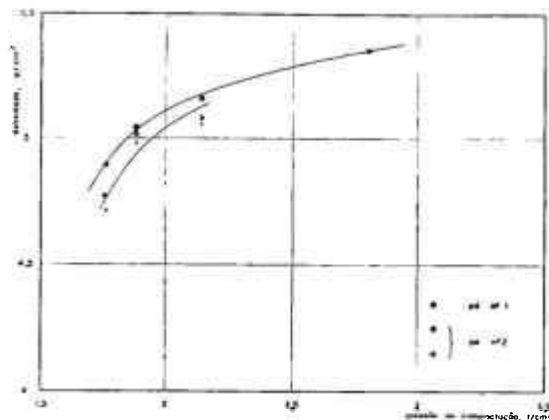


Fig. 4 -- Influência da pressão de compactação e do pó sobre as densidades aparentes das pastilhas (estado compactado).

de hidrogênio. Para as cargas de 2 kg em hotes de grafita de construção especial pela própria Divisão, a redução é obtida a 750°C permanecendo a carga durante 1 hora à essa temperatura.

Os estudos experimentais permitiram determinar a influência, para os pós de U_3O_8 e para os de diuranato de amônio submetidos diretamente à redução, da temperatura sobre o valor do índice O/U, bem como sobre algumas das propriedades físicas dos pós de UO_2 não-estequiométrico obtido.

A dissociação prévia do diuranato de amônio a U_3O_8 realizada ao ar a 850°C permitiu não somente baixar aquém dos limites toleráveis a concentração de S como também eliminar a tendência de elevada piroforicidade dos pós obtidos a partir de diuranato de amônio.

3.2 — *Condicionalmento e moagem do material reduzido*

A operação de moagem em moinhos metálicos ou com revestimento de borracha, empregando bolas de aço ou barras do mesmo material, visa simultaneamente reduzir a granulometria do pó na redução e condicionar a superfície dos grânulos para a operação subsequente de compactação.

A influência do meio de moagem sobre a densidade do pó foi estudada através de amostras de UO_2 obtido por redução a 700°C durante uma hora, submetidas a moagem por tempos crescentes em dois moinhos metálicos idênticos, num dos quais se empregou barras de aço de 19 mm de diâmetro e no outro barras de 9,5 mm de diâmetro. Todas as barras tinham igual comprimento, de 119 mm, sendo também igual o valor da relação carga de pó/massa de barras de aço.

As figs. 2 e 3 reproduzem, respectivamente, os valores experimentais obtidos da densidade aparente "sôlta" e "batida" em função do tempo de moagem, para barras de 9,5 e de 19 mm de diâmetro. A maior superfície específica das barras menores (fig. 2) assegura andamento mais rápido da curva de condicionalmento, mantidas constantes as demais variáveis. Noutras palavras, as barras de menor diâmetro permitem obter em tempos mais curtos de moagem os valores daqueles índices só obtidos com tempos mais longos quando o meio de moagem foi constituído por barras de 19 mm de diâmetro.

As barras de aço introduziram entretanto nível de Fe muito elevado, motivo pelo qual os estudos posteriores foram feitos sempre com carga de bolas de aço inoxidável de 8 a 12 mm de diâmetro.

Tendo sido constatado que, logo após iniciada a operação em moinhos metálicos não revestidos internamente, recobriam-se as bolas de película aderente de pós, procurou-se estudar a influência da remoção periódica dessa película sobre o andamento das curvas de densidade em função do tempo de moagem. Os resultados obtidos mostraram que, embora se possa economizar tempo de condicionamento com a remoção da citada película, cuja espessura aumenta gradativamente com o tempo, essa solução é bastante trabalhosa, podendo ainda causar perdas mecânicas de material. Por isso, os novos moinhos construídos foram dotados de revestimento de borracha, segundo projeto executado por um dos autores. Com tais moinhos, comprovou-se que a inversão periódica da posição do moinho sobre os rolos do aparelho conduzia a quase completa remoção da película sobre as bolas de aço inoxidável.

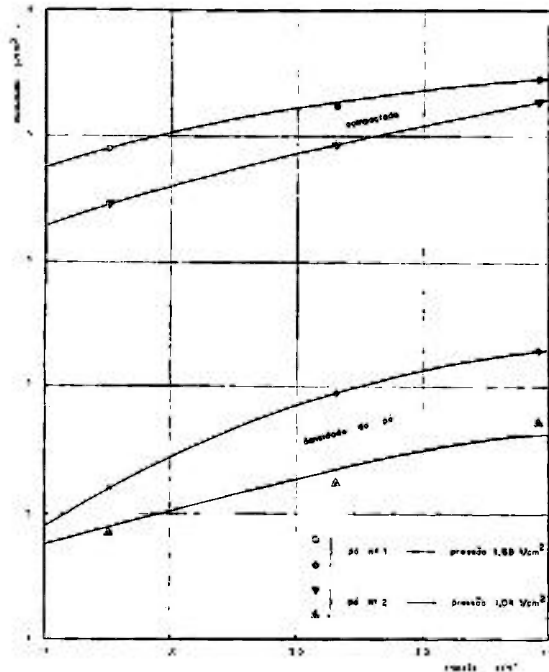


Fig. 5 — Influência da pressão de pré-compactação sobre a densidade de pastilhas obtidas sob as pressões constantes de 1,04 t/cm² (pó n.º 2) e de 1,68 t/cm² (pó n.º 1), respectivamente. Observar também a influência da pré-compactação sobre a densidade do pó.

3.3 — *Correlação entre as densidades aparentes da carga condicionada e a densidade das pastilhas no estado compactado.*

Na fig. 4 estão indicados os valores obtidos da densidade de pastilhas compactadas de cargas de pós de duas partidas diferentes, obtidos contudo à mesma temperatura de 700°C e a partir de diuranato de amônio, em função da pressão de compactação, na faixa entre 1,75 e 2,8 t/cm². O pó n.º 1 foi condicionado de forma a desenvolver maior densidade aparente que o pó "2", o que explica terem sido os valores obtidos para aquele pó sempre mais elevados que para este último.

Essa correlação é de importância prática, de vez que demonstrou que pós da mesma origem e produzidos nas mesmas condições mas de condicionamentos diferentes comportam-se diferentemente na compactação. Demonstraram ainda os resultados experimentais que pós condicionados de forma diferente poderiam ser compactados a uma dada densidade sob uma dada pressão, desde que fôssem reduzidos de forma a terem diferentes densidades no estado solto.

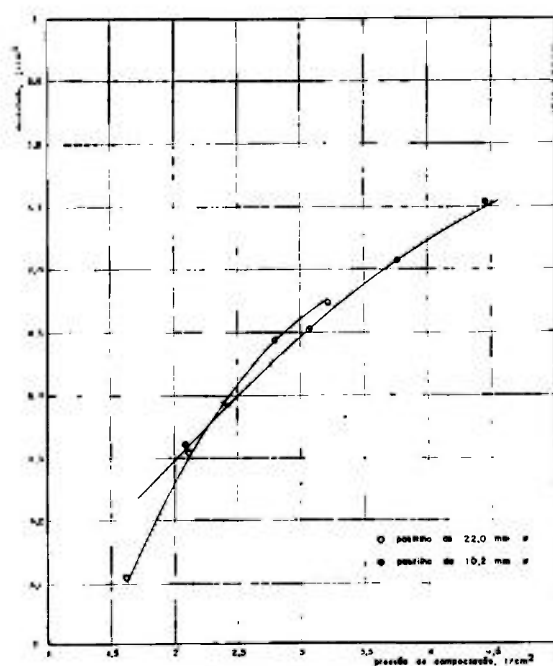


Fig. 6 — Influências do diâmetro da matriz e da pressão de compactação sobre as densidades (estado compactado) de pastilhas produzidas a partir de cargas com 2% de carbowax-4000.

3.4 — *Influência da pressão de pré-compactação*

A influência da pré-compactação sobre as propriedades dos pós foi estudada determinando-se as densidades dos pós em função da pressão de pré-compactação, tanto no estado moído como no estado não-moído, após posterior desintegração, e as densidades das pastilhas obtidas a partir desses pós, quando obtidas sob as pressões constantes de 1,04 e 1,68 t/cm². Os valores obtidos foram representados na fig. 5.

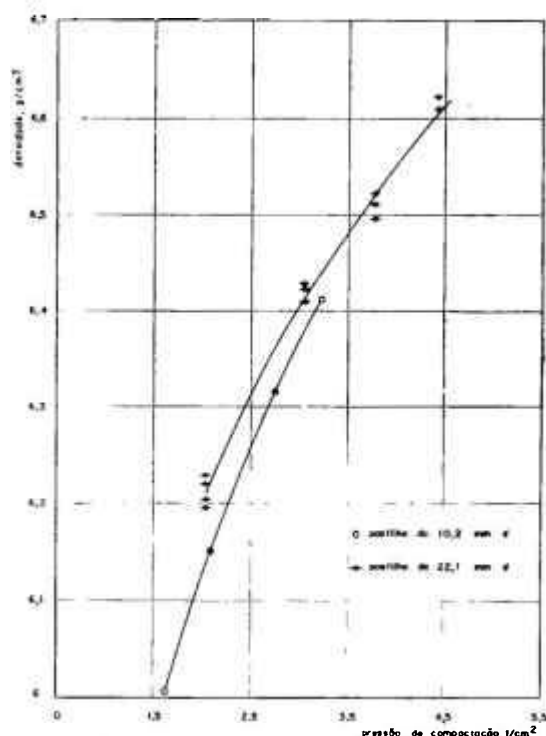


Fig. 7 — Influências do diâmetro da matriz e da pressão de compactação sobre as densidades (estado compactado) de pastilhas produzidas a partir de cargas com 2% de aglomerante "1031". O pó era o mesmo utilizado no preparo das cargas da fig. 6.

Nessa figura, todos os resultados se referem a pó obtido por redução direta do diuranato de amônio a 700°C, o pó 1 tendo sido moído e o 2 não. Mostram os resultados que a densidade aparente do pó aumenta com a pressão de compactação, o efeito sendo mais pronunciado com as pressões de pré-compactação relativa-

mente baixas. Para o "pó 1" a pré-compactação a 3,92 t/cm² permitiu, por exemplo, elevar a densidade da pastilha de 4,74 a 5,46 g/cm³, quando a pressão de compactação fôra apenas de 1,68 t/cm².

3.5 — *Influências da pressão de compactação, da dimensão da matriz e do aglomerante na densidade da pastilha no estado compactado*

Visando determinar a influência das dimensões da matriz e da pressão de compactação sobre a densidade no estado de compactado de pastilhas produzidas a partir de cargas condicionadas com 2% de carbowax 4000 (um dos agentes utilizados correntemente na produção de pastilhas de elevada densidade), foram realizados os ensaios cujos resultados estão reproduzidos na fig. 6. Os valores obtidos mostram a influência da pressão de compactação sobre a densidade de pastilhas obtidas em matrizes de 10,2 e de 22 mm de diâmetro.

A fig. 7 reproduz os resultados obtidos noutra série de experiências, nas quais, e nas mesmas matrizes, estudou-se a influência da pressão de compactação sobre a densidade de pastilhas produzidas agora a partir de cargas condicionadas com 2% de aglomerante "1031". Para este aglomerante, as densidades das pastilhas de 22,1 mm de diâmetro são sempre maiores que as das pastilhas de 10,1 mm, quando é mantida constante a pressão de compactação. Embora os valores obtidos sejam muito bons, o aglomerante "1031" mostrou-se inferior ao "carbowax-4000", sendo sempre menores os valores das densidades das pastilhas obtidas com aquele, mantidas constantes tôdas as demais variáveis.

3.6 — *Influência da pressão de compactação e do diâmetro da pastilha sobre a densidade, no estado compactado e no estado sinterizado, durante duas horas a 1000°C sob hidrogênio.*

Convém lembrar aqui que, e conforme esclareceram os autores na introdução, o programa estabelecido visava a produção de pastilhas de $6,6 \pm 0,1$ g/cm³ de densidade no estado sinterizado. Por esse motivo, não estudaram nesta contribuição os autores a influência da temperatura e do tempo à temperatura sobre a densidade das pastilhas.

Na fig. 8 foram reproduzidos os resultados, obtidos experimentalmente, das densidades de pastilhas sinterizadas a 1000°C durante 2 horas sob hidrogênio, tanto as de 10 mm como as de 20 mm de diâmetro, em função da pressão de compactação (va-

riando esta entre 1,3 e 4,4 t/cm²). No mesmo gráfico foram também reproduzidos os valores das densidades das pastilhas no estado compactado.

Mostram os valores que os resultados obtidos nas matrizes de 20 mm foram sempre pouco melhores que os das matrizes de 10 mm. Mostram ainda que o aumento de densidade, traduzindo o "índice de sinterização" proposto em outra contribuição ³, é tanto menor quanto maior a pressão de compactação, mantida constante a geometria da pastilha.

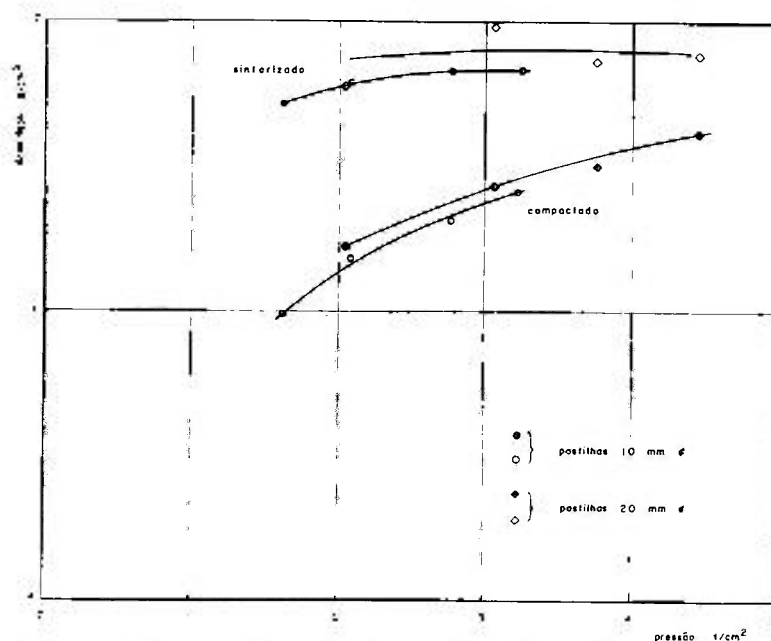


Fig. 8 — Influências da pressão de compactação e do diâmetro da matriz sobre a densidade das pastilhas sinterizadas a 1000°C durante 2 h sob hidrogênio. Representados também os valores das densidades das pastilhas no estado compactado.

3.7 — Influência das velocidades de aquecimento e de resfriamento sobre o aparecimento de trincas das pastilhas na sinterização

A sinterização das pastilhas de 40,15 mm de diâmetro ofereceu as dificuldades que foram antevistas através do estudo prévio do comportamento na sinterização das pastilhas de 22,1 mm de diâmetro. Essas dificuldades consistiam na grande suscetibilidade de frincar, tanto no aquecimento como no resfriamento

até a temperatura ambiente. Os estudos experimentais permitiram determinar as melhores condições de temperatura de calcinação prévia, bem como as velocidades de aquecimento e de resfriamento que podiam ser empregadas sem risco de contribuir para a formação de trincas decorrentes das tensões devidas aos gradientes térmicos.

Com os valores obtidos têm sido produzidas centenas de pastilhas isentas de quaisquer defeitos. É de se notar, por fim, que as pastilhas necessárias ao reator "Re-Suco" são provavelmente as maiores já produzidas.

*

Os autores manifestam seu agradecimento pela colaboração eficiente prestada pelo Cel. Paulo Lobo Peçanha, Diretor da Combustol Ltda., na construção dos fornos de redução e de sinterização, bem como de numerosos dispositivos auxiliares, e ao Sr. Peramo Ferri, Diretor da Mecânica de Precisão Apis Ltda. e à Brasinter S.A. respectivamente pela execução de matrizes prismáticas e para as pastilhas "Re-Suco".

4. CONCLUSÕES

1. O programa de estudos experimentais descrito visou a produção de pastilhas de UO_2 de 40,15 mm de diâmetro e de $6,6 \pm 0,1$ g/cm³ de densidade necessárias para o reator "Re-Suco" e a serem produzidas pela Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica dentro das melhores condições de investimento e de custo de produção. Todo o aparelhamento necessário foi obtido ou construído especialmente em São Paulo.

2. O controle da calcinação prévia do diuranato de amônio permitiu reduzir ao nível desejado a concentração de S no material reduzido e evitar a elevada piroforicidade que fôra constatada nos pós produzidos por redução direta do diuranato de amônio sob hidrogênio em baixas temperaturas.

3. A influência das variáveis do meio de moagem sobre a densidade dos pós foi determinada experimentalmente em função do tempo. A solução adotada foi a de esferas de aço inoxidável, a fim de evitar a contaminação no produto condicionado.

4. Foi estabelecida a correlação entre as densidades aparentes da carga condicionada, através das densidades "sôlta" e "batida" e a densidade das pastilhas no estado compactado, em função da pressão de compactação. Foi estabelecida, igualmente, a influência da pressão de compactação.

5. As influências da pressão de compactação, do diâmetro da matriz e da natureza do aglomerante (“carbowax-4000” e “1031”) foram estabelecidas para as pastilhas no estado compactado.

6. Foram também estabelecidas as influências do diâmetro da matriz e da pressão de compactação sobre as densidades de pastilhas sinterizadas em condições estabelecidas, durante duas horas a 1000°C e sob atmosfera de hidrogênio.

7. Foram, por fim, determinadas as maiores velocidades de aquecimento e de resfriamento das pastilhas no forno que não determinam trincas devidas a tensões dos gradientes térmicos.

REFERÊNCIAS

1. WILKINSON, W. D. — *Combustíveis Cerâmicos e Grafita*. CNEN-1-EN. Rio de Janeiro, 1961.
2. BRIL, S. — *Óxidos Cerâmicos*. *Selecta Chimica*, v. 20, pg 19-88, 1961.
3. PEREIRA DA SILVA, P. S. C.; SOUZA SANTOS, T. D. e FREITAS, C. T. — *Contrôle Dimensional de Pastilhas de Urânia para o reator Re-Suco*. Trabalho apresentado ao XVIII Congresso Anual da ABM. Neste Boletim, pág. 759.