



**CARACTERÍSTICOS ESTRUTURAIS DE PASTILHAS RETIFICADAS
DE UO_2 PARA REATORES NUCLEARES**

*THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS, CLAUER TRENCH DE
FREITAS, HELITON MOTTA HAYDT, ERBERTO FRANCISCO
GENTILE e FRANCISCO AMBROSIO FILHO*

PUBLICAÇÃO IEA N.º 321

Dezembro — 1973

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

**CARACTERÍSTICAS ESTRUTURAIS DE PASTILHAS RETIFICADAS
DE UO₂ PARA REATORES NUCLEARES ***

**Tharcisio D. de Souza Santos, Clauer Trench de Freitas,
Heliton Motta Haydt, Erberto Francisco Gentile,
Francisco Ambrosio Filho**

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

**Publicação IEA Nº 321
Dezembro - 1973**

Separata da Revista METALURGIA, vol. 29 - nº 182 - janeiro, 1973.

* Contribuição Técnica nº 1040. Apresentada ao XXVII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; São Paulo, SP; julho, 1972.

Instituto de Energia Atômica

Conselho Superior

Eng^o Roberto N. Jafet – Presidente
Prof.Dr.Emilio Mattar – Vice-Presidente
Prof.Dr.José Augusto Martins
Dr.Affonso Celso Pastore
Prof.Dr.Milton Campos
Eng^o Helcio Modesto da Costa

Superintendente

Rômulo Ribeiro Pieroni

Característicos Estruturais de Pastilhas Retificadas de UO_2 para Reatores Nucleares ⁽¹⁾

THARCISIO D. DE SOUZA SANTOS ⁽²⁾

CLAUER TRENCH DE FREITAS ⁽³⁾

HELITON MOTTA HAYDT ⁽⁴⁾

ERBERTO FRANCISCO GENTILE ⁽⁵⁾

FRANCISCO AMBROSIO FILHO ⁽⁶⁾

R E S U M O

Esta contribuição descreve, em resumo, os característicos de pós de UO_2 produzidos na Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica e sua utilização na fabricação de pastilhas sinterizadas de elevada densidade, com característicos equivalentes aos utilizados em reatores de potência, e bem como os característicos estruturais das pastilhas resultantes. Estuda ainda o comportamento de diversos pós cerâmicos do ponto de suas propriedades físico-químicas mais importantes e a microestrutura das pastilhas sinterizadas a $1625^\circ C$ sob hidrogênio. A microestrutura tem sido estudada no microscópio eletrônico de varredura Stereoscan, da Divisão. Por fim estudam-se os característicos de retificação superficial das pastilhas fabricadas, executadas nas retificas "centerless" da Divisão, a fim de garantir que sejam observadas rígidas tolerâncias estabelecidas quanto a variações dimensionais e rugosidade superficial.

1. INTRODUÇÃO

Em prosseguimento às atividades que vêm sendo desenvolvidas pela Divisão de Metalurgia Nuclear no aperfeiçoamento de processos de fabricação de elementos combustíveis para reatores, foram realizados extensos estudos experimentais sobre as propriedades dos pós de UO_2 produzidos na Divisão, sobre seu comportamento na sinterização a $1625^\circ C$ em hidrogênio, sobre as microestruturas das pastilhas obtidas e, por fim, sobre a retificação dessas pastilhas de elevada densidade. Essa operação final visa assegurar que as rígidas tolerâncias dimensionais e de rugosidade superficial podem ser satisfeitas pelas pastilhas produzidas, tendo em vista o elevado

número de unidades necessárias para a fabricação dos elementos combustíveis.

Esta contribuição visa divulgar os progressos realizados nesse setor, os quais têm grande importância em face da nova Usina Piloto de Cerâmica Nuclear, em fase de instalação, e cujas atividades deverão ser iniciadas em 1972.

2. ENSAIOS DE CARACTERIZAÇÃO DOS PÓS DE UO_2

Convém passar em revista os processos empregados pela Divisão de Metalurgia Nuclear na definição dos característicos físico-químicos e físicos dos pós de UO_2 por ela produzidos, a partir de diuranato de amônio de pureza nuclear, produzido no mesmo Instituto de Energia Atômica pela sua Divisão de Engenharia Química.

Óxidos de urânio, de índices de sinterabilidade bastante diferenciados, foram utilizados no desenvolvimento deste trabalho; os tipos empregados originam-se, sempre, de diuranato de amônio, produzido entretanto em condições diferentes de precipitação. Assim, o tipo UO_2-N resulta de diuranato de amônio (DUA) produzido por precipitação de nitrato de urânio, em pH próximo de 7; o UO_2-S proveio de DUA obtido por precipitação de sulfato de urânio; o UO_2-D originou-se de DUA, proveniente de precipitação de nitrato de urânio a $60^\circ C$, em pH=7.

Para o preparo do UO_2-D , calcinou-se o correspondente DUA a $500^\circ C$ durante 3 h, reduzindo

- (1) Contribuição Técnica n.º 1040. Apresentada ao XXVII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; São Paulo, SP; julho, 1972.
- (2) Membro da ABM; Chefe da Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.
- (3) Membro da ABM; M.Sc. em Engenharia; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.
- (4) Membro da ABM; M.Sc. em Engenharia Metalúrgica; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.
- (5) Membro da ABM; Mestre em Engenharia Metalúrgica; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.
- (6) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista; Divisão de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica, São Paulo, SP.

do-se o produto por amônia dissociada durante 1 h, a 750°C. Os óxidos UO_2-N e UO_2-S foram obtidos por redução direta ou DUA, em atmosfera de hidrogênio a 650°C, durante 1 h. Esses processamentos diversos trazem em consequência diferenças de propriedades físicas e físico-químicas, como se verá a seguir.

As áreas específicas dos óxidos de urânio foram determinadas por meio de instrumento CG, modelo 10, mostrado na figura 1. Baseia-se ele no método dinâmico originalmente usado por Nelsen e Eggertsen⁽¹⁾, em que uma mistura de nitrogênio e hélio flui, continuamente, através de uma camada da amostra; a composição do efluente é controlada por medidas de condutividade térmica, determinando-se áreas de picos de adsorção e desorção em um registrador-integrador potenciométrico. Para cálculo da pressão de saturação de vapor do nitrogênio nas temperaturas empregadas, da ordem de -196°C, utilizou-se termômetro de pressão de saturação de oxigênio construído na Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica. Tal instrumento, também mostrado na figura 1, revelou-se capaz de indicar variações de temperatura inferiores a 0,05°C, no banho de nitrogênio líquido.

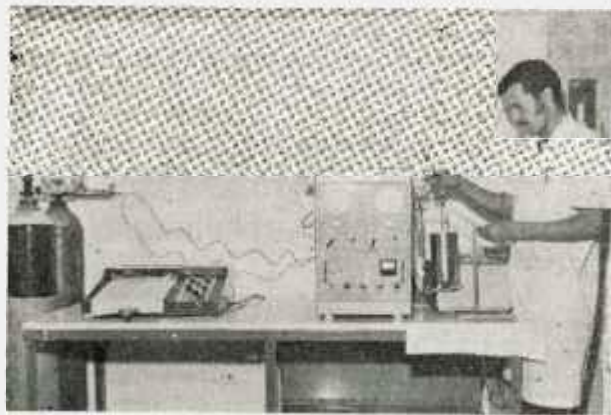


Fig. 1 — Aparelhamento empregado na medida das áreas específicas de óxidos de urânio. A esquerda o termômetro de pressão de vapor de oxigênio e à direita o conjunto registrador da adsorção de nitrogênio nas amostras.

Os valores encontrados para as áreas específicas dos óxidos UO_2-N , UO_2-S e UO_2-D , estão apresentados na tabela I. São indicativos de pós de sinterabilidade satisfatória, de acordo com os resultados obtidos por Carpenter⁽²⁾ e aqueles apresentados na referência⁽³⁾.

Imediatamente após a redução, o pó UO_2-N apresentava-se levemente pirofórico a piroforicidade se manifestava somente nas camadas superficiais do material, quando ainda colocado em botes de redução. Esse efeito, todavia, não acarretava oxidação excessiva do UO_2-N , cuja relação O/U é indicada na tabela I, juntamente com os

valores correspondentes aos óxidos UO_2-S e UO_2-D . Suas densidades aparentes (conforme definição constante na ref. 14) para material como reduzido, sem qualquer compactação, também constam da tabela I.

Para as determinações das relações O/U utilizou-se método largamente empregado por Handwerk, Forlano⁽⁴⁾ e seus colaboradores, no Laboratório Nacional de Argonne (EUA). Baseia-se na oxidação ao ar do UO_{2+x} ($x < 0,667$); sua rapidez e simplicidade são particularmente atraentes para controle de qualidade de UO_{2+x} , produzido em escala de usina-piloto (cerca de 40 kg/dia, no IEA, em botes de 1 kg) ou industrial.

Tanto o UO_2-N como o UO_2-S passavam facilmente pela peneira de 20 malhas por polegada linear. Porém o UO_2-D , como obtido após a redução, apresentava aglomerados cujas dimensões chegavam até a 40 mm; a moagem com bolas de aço, em recipientes revestidos de borracha, por tempos de até 6 h, não permitiu melhorar substancialmente a granulometria do pó. A tabela II mostra os resultados de análise granulométrica para pós como recebidos da redução e para aqueles moídos em recipientes de 130 mm de diâmetro, com velocidade periférica de 85 cm.seg⁻¹. Metade do volume do moinho era preenchido por bolas de aço de 12,5 mm de diâmetro; a carga de UO_2-D ocupava um quarto do volume total.

TABELA I — Áreas específicas, densidades aparentes e relações O/U para óxidos de urânio (após a operação de redução).

Material	Area específica (m ² .g ⁻¹)	Densidade aparente g.cm ⁻³	Relação O/U
UO_2-N	2,7	1,44	2,04
UO_2-S	2,5	1,51	2,06
UO_2-D	1,9	1,24	2,01

TABELA II — Efeito de moagem a seco na granulometria de UO_2-D para diferentes tempos de operação.

Peneira Tyler	Porcentagem em peso retida		
	0 h	1 h	5 h
20	70,1	0,4	0,2
65	13,6	52,8	84,9
100	5,3	28,1	2,8
150	6,0	12,7	6,3
200	3,7	3,9	2,9
-200	1,3	2,1	1,9

A moagem do UO_2 -D é uma fase do processo de fabricação que, considerados os resultados até o presente obtidos, está demandando pesquisas complementares; pretende-se aumentar sua eficiência mediante diminuição da velocidade periférica, troca das bolas de aço por outras de alumina, de diferentes diâmetros, e incorporação de água à carga. Observe-se ainda que se o aglomerante puder ser adicionado ao óxido de urânio, na operação de moagem, esta fase de fabricação, desnecessária para os UO_2 -N e UO_2 -S, poderá fornecer material já pronto para compactação. Presentemente, porém, a necessidade de se moer o pó constitui uma séria desvantagem para o UO_2 -D.

A morfologia dos pós de UO_2 -D, como reduzidos, está sendo estudada mediante microscopia eletrônica de varredura. O microscópio utilizado (fig. 2), recentemente instalado na Divisão de Metalurgia Nuclear do IEA (setembro de 1971), tem permitido estudo morfológicos de caráter preliminar, também para os óxidos UO_2 -N e UO_2 -S. Inicialmente, sem que se desse qualquer revestimento metálico às partículas cerâmicas, foram feitos exames sob tensões baixas, da ordem de 1 a 2 kV; alcançou-se mesmo 5 kV, sem desenvolvimento de cargas elétricas excessivas na superfície da amostra, mediante a utilização de fluido anti-estático (Tetenal-Photowerk Hamburg). Atualmente (abril de 1972) preparam-se amostras para receber filme de Au-Pd, com o que poderão vir a ser empregadas tensões de até 30 kV.



Fig. 2 — Forno Hedlin de resistência de molibdênio para sinterização de pastilhas de UO_2 em hidrogênio até 1700°C.

Os exames preliminares foram realizados com aumentos de 2000 vezes, para pós que haviam passado na peneira de 325 malhas por polegada linear. Revelaram que o UO_2 -D se apresenta sob a forma de aglomerados muito compactos, constituídos por partículas arredondadas, com poucos poros. O UO_2 também apresentava aglomerados

bastante densos, mas suas partículas constituintes eram alongadas e com mais porosidade. O UO_2 -N exibia também aglomerados, mas menos volumosos e numerosos que nos dois casos anteriores.

Sob o ponto de vista de sinterabilidade, é importante conhecer melhor a morfologia das partículas constituintes dos aglomerados. Para tal, torna-se imprescindível revestir os pós com filmes metálicos, podendo-se assim atingir tensões da ordem de 20 kV, as quais permitirão alcançar resoluções melhores que 200 Å.

Os microscópios ópticos comuns revelaram-se de pouca valia em tais estudos de morfologia, devido as suas pequenas profundidades de foco, para os aumentos requeridos.

3. COMPACTAÇÃO E PRÉ-SINTERIZAÇÃO

A prensagem do UO_2 , após secagem em estufa a 80°C, foi efetuada em matriz flutuante com cavidade cilíndrica de 10 mm de diâmetro. Os esforços aplicados corresponderam a pressões entre 1 e 1,5 t.cm⁻², tendo-se procurado obter as maiores densidades possíveis, sem o aparecimento de trincas ou quaisquer outros defeitos de compactação.

Os pós UO_2 -S e UO_2 -N demandaram uma operação prévia de pré-compactação, em pressões compreendidas entre 1,5 e 2 t.cm⁻². Só dessa forma foi possível obter compactados sem defeitos, com densidades superiores a 4,5 g.cm⁻³. A fase de eliminação do aglomerante desenvolveu-se sob nitrogênio em um forno de pré-sinterização, dotado de oito zonas com controles independentes de temperatura⁽⁵⁾. O tempo de permanência na zona mais quente, a 500°C, foi de 60 min.

As densidades das pastilhas após a operação de pré-sinterização, estão apresentadas na tabela III.

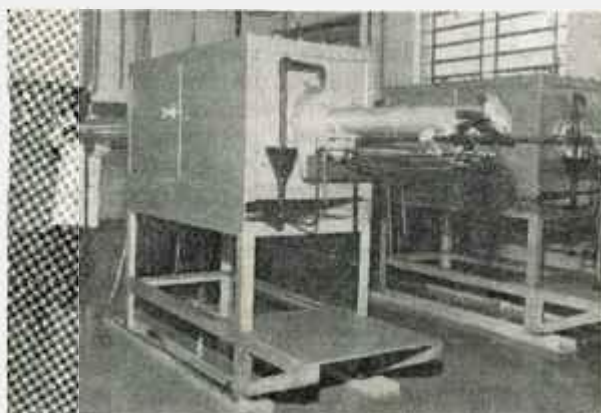


Fig. 3 — Fornos Tammann empregados na Divisão de Metalurgia Nuclear, para sinterização de pastilhas de UO_2 até 1600°C.

4. SINTERIZAÇÃO DAS PASTILHAS

Dois fornos foram utilizados para o desenvolvimento das operações de sinterização em atmosfera de hidrogênio. O mais empregado (fig. 2) tinha mufla cilíndrica de alumina, em torno da qual havia uma resistência elétrica de molibdênio, em espiral; sua zona mais quente atingia 1670°C numa extensão de 60 cm. O segundo forno, do tipo Tammann (fig. 3), dispunha de mufla de grafita, capaz de alcançar 1600°C, numa extensão de 80 cm; neste caso as pastilhas eram colocadas no interior de alumina em pó, depositada em botes de grafita.

Observou-se que a partir de 1200°C as pastilhas de UO_2 eram severamente atacadas no forno tipo Tammann. A 1600°C chegou a ocorrer desagregação de camada externa das pastilhas, numa profundidade de até 2 mm; tal fato, ora objeto de estudo pelos autores, poderia ser explicado por extensa formação de carbonetos de urânio, nas peças sinterizadas, e sua subsequente interação com o hidrogênio e a umidade presentes na atmosfera do forno.

Convém observar, ainda, que a duração dos resistores de grafita nos fornos Tammann é muito afetada pela temperatura atingida; na experiência acumulada com os fornos utilizados, a duração de várias dezenas de horas a 1400°C, cai a cerca de 6 h a 1600°C. Por essas razões, os referidos fornos são utilizados em operações que não exijam temperaturas acima de 1400°C.

Quanto ao mencionado forno de mufla de alumina e aquecido por resistência de molibdênio, seu funcionamento vem se mostrando plenamente satisfatório; entretanto, convém notar que os pares termoeletrônicos de controle de W-WRe, para 1600°C, duram apenas duas horas quando apresentam suas extremidades expostas à atmosfera do forno. O controle de temperatura tem sido efetuado por pirômetro óptico, utilizando-se os referidos pares termoeletrônicos apenas para calibração e verificação das determinações ópticas.

A vazão de hidrogênio neste forno de sinterização deve ser mantida no mínimo em 12 l/min., o que equivale à vazão específica de 0,2 l/min, por cm^2 de área da seção transversal da mufla, normal à direção dos gases. Constatou-se que vazões inferiores àquele valor provocam oxidação parcial do UO_2-N . O valor da densidade das pastilhas de UO_2-N sinterizadas, corresponde a 94,3% da densidade teórica, satisfaz à norma norte-americana N5-5 e enquadra-se nos valores recomendados na Alemanha (6). As pastilhas apresentam boa superfície no estado sinterizado, com raros defeitos superficiais, os quais podem ser removidos com a operação subsequente de retificação.

Os pós de UO_2-S e UO_2-D , conquanto forneçam pastilhas de densidade bastante elevada, de-

vem contudo ser reservados para uso em reatores sub-críticos, ou para reatores críticos de baixa potência (7). Estes óxidos, entretanto, se forem submetidos à operação de condicionamento em moinhos de bolas e pré-prensados sob 1,5 t/cm², provavelmente permitirão que se produzam pastilhas com densidades superiores a 93% da densidade teórica do UO_2 . A tabela III apresenta as densidades das pastilhas de UO_2-N , UO_2-S e UO_2-D , sinterizadas a $1625 \pm 25^\circ C$ por 4 h.

TABELA III — Densidades de pastilhas de UO_2 após eliminação do aglomerante (d_{ps}) e depois da sinterização a 1625°C por 4 h (d_s).

Material	d_{ps}	% d_t	d_s	% d_t
UO_2-N	5,15	47,0	10,33	94,3
UO_2-S	5,00	45,6	10,17	92,8
UO_2-D	4,55	41,5	10,08	92,0

O estudo de seções polidas, das pastilhas obtidas, foi desenvolvido por meio de um microscópio ceramográfico Leitz Orthoplan. As microestruturas observadas estão de acordo com as especificações canadenses MET-67 (8). Outras observações têm sido feitas com o microscópio eletrônico de varredura Stereoscan (fig. 4).



Fig. 4 — Microscópio eletrônico de varredura Stereoscan S4 instalado na Divisão de Metalurgia Nuclear, utilizado no estudo da morfologia de pós de UO_2 e no exame da superfície das pastilhas.

A figura 5 mostra a superfície externa de pastilha, sem polimento, obtida com UO_2-D , aumento de 1455 vezes. Essa pastilha apresentava densidade sinterizada de 10,23 g.cm⁻³ e foi produzida em série de 20 outras por sinterização a 1625°C durante 4 h no forno Hedin; velocidades

de aquecimento de $140^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}^{-1}$ e de resfriamento de $300^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}^{-1}$. A micro-fotografia obtida no microscópio eletrônico de varredura evidencia perfeita sinterização e ausência de defeitos nos contornos dos grãos.

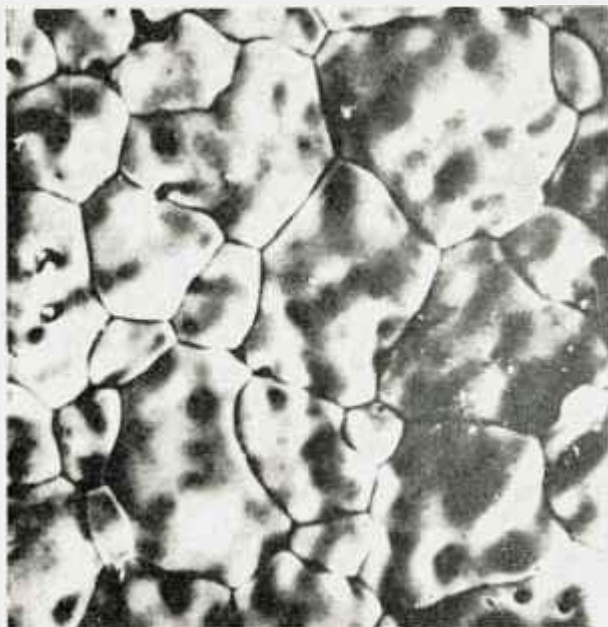


Fig. 5 — Superfície externa de pastilha produzida com $\text{UO}_2\text{-D}$, 1455 aumentos, sem polimento, obtida no microscópio de varredura. (Reduzida a 2/3 no clichê).

A figura 6 mostra a superfície de fratura de uma pastilha obtida, nas mesmas condições acima especificadas, com pó $\text{UO}_2\text{-N}$, com aumento de 1299 vezes. Observar a maior finura dos grãos de UO_2 .

5. RETIFICAÇÃO DAS PASTILHAS

As exigências de folga, tão baixa quanto possível, entre a superfície cilíndrica das pastilhas e a superfície interna dos tubos de revestimento — impostas pelos gradientes admissíveis de temperatura nos elementos combustíveis de reatores de potência — recomendam, além de outras precauções estritas quanto aos tubos de revestimento, rígido controle de diâmetro das pastilhas e sobre o estado de sua superfície.

Para dois projetos presentemente em andamento, de fabricação de elementos combustíveis, a Divisão de Metalurgia Nuclear propôs as seguintes tolerâncias:

- rugosidade superficial máxima, 2 microns
- variação máxima de diâmetro, 0,01 mm.

Além desses requisitos, existem outras exigências quanto ao acabamento das superfícies normais às cilíndricas.

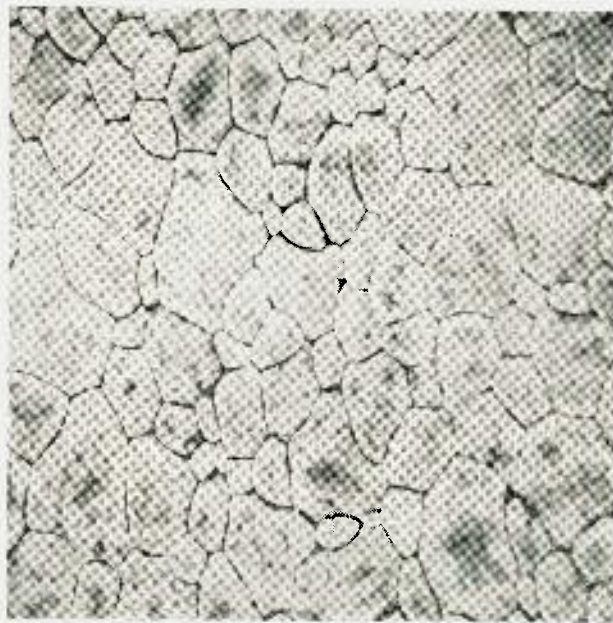


Fig. 6 — Superfície obtida por fratura de pastilha de $\text{UO}_2\text{-N}$, sob 1299 aumentos. (Reduzida a 2/3 no clichê).

As pastilhas sinterizadas, depois de inspecionadas quanto as suas dimensões, massa e outros característicos, em seguida, foram submetidas à retificação, em máquina de fabricação nacional, da firma Bovi, modelo RB-400, do tipo "centerless". O rebolo de corte (SIVAT-alumina) tinha 300 mm de diâmetro e 80 mm de espessura; o rebolo de arraste (SIVAT-resinóide) era de 200×80 mm. O rebolo de corte gira a 1980 rpm e a máquina é acionada por motor de 5 CV. O refrigerante empregado foi o IORGA-RM/2 disperso em água, na concentração de 2% em volume.

As operações de retificação foram feitas por meio de introdução vertical, uma vez que era reduzido o número de pastilhas da série de ensaios. Foi dado um único passe, passando-se do diâmetro inicial médio de $8,30 \pm 0,06$ para o diâmetro final médio de $8,202 \pm 0,005$ mm. As pastilhas submetidas a essa operação originaram-se de $\text{UO}_2\text{-N}$ e apresentavam dureza Knoop de 570 kg/mm^2 (ensaio sob carga de 100 g). O tamanho médio de grão era de 15,7 microns.

Em produção na Usina Piloto, a operação de retificação será realizada em máquinas em série, a fim de evitar que passes mais severos possam introduzir trincas. Constatou-se, em experiências realizadas para verificar a influência da severidade do passe sobre o aparecimento de trincas, que reduções totais de 0,4 mm já podem provocar fissuras, reveladas por observação com lupa e aumento de 5 vezes.

A rugosidade superficial das pastilhas retificadas está sendo estudada mediante microscopia eletrônica de varredura, confrontando-se os sinais

emitidos pela superfície das pastilhas com os que resultam de indentações com penetrador Knoop para dureza superficial. Os resultados obtidos, ainda de caráter preliminar, indicam que a rugosidade superficial máxima das pastilhas observadas é consideravelmente inferior a 2 microns.

A figura 7 mostra o aspecto de uma pastilha de UO_2 -S fraturada por meio de penetração do indentador Knoop (1083 aumentos). Esse aspecto, também obtido por microscópio eletrônico de varredura, evidencia o característico de grande fragilidade inerente ao UO_2 -S, em contraste com os outros dois tipos de óxidos de urânio, UO_2 -D e -N, respectivamente.



Fig. 7 — Superfície obtida por fraturamento de pastilhas de UO_2 -S, evidenciando grande susceptibilidade à trincas. 1085 aumentos, em microscópio de varredura. (Reduzida a 2/3 no clichê).

6. CONCLUSÕES

1. Os pós de UO_2 processados na Divisão de Metalurgia Nuclear a partir de diuranato de amônio, dos tipos -N, -S e -D, apresentam características físicas e químicas bastante diferenciados. Essas diferenças são indicadas principalmente pelos valores respectivos de área específica de relação O/U e se refletem na sinterabilidade dos citados pós, conforme mostraram os resultados das tabelas I e III.

2. A sinterização de pastilhas produzidas com UO_2 -N, realizada sob hidrogênio a $1625^\circ C$ durante 4 h, forneceu densidade média de $10,33$

g/cm^3 , correspondente a 94,3% do valor teórico. Os valores de densidade de pastilhas obtidas nas mesmas condições com pós de UO_2 -S e UO_2 -D foram, respectivamente de 10,17 e 10,08 g/cm^3 , correspondentes a 92,8 e a 92,0% da densidade teórica.

3. A operação de retificação, realizada em retíficas tipo "centerless" e em uma única passagem, permitiu manter os diâmetros $8,202 \pm 0,005$ mm, satisfazendo amplamente ao limite estabelecido de tolerância.

4. Os exames de superfície, efetuados com auxílio do microscópio eletrônico de varredura, e da determinação de profundidade de sulcos por comparação com indentação por pirâmide de diamante do ensaio Knoop, mostraram que as especificações são obedecidas com grande margem.

AGRADECIMENTOS

Registram os autores com satisfação a colaboração devida aos técnicos, Srs. Domingos de Oliveira, Nelson Gomes e técnica-química Sra. Rosa Maria Carbone. Igual agradecimento é devido aos demais colaboradores da Divisão de Metalurgia Nuclear pelo interesse no desenvolvimento das tarefas que lhes couberam.

BIBLIOGRAFIA

1. GREGG, S. J.; SING, K. S. W. — *Adsorption, Surface Area and Porosity*. Academic Press, Londres, p. 339 (1967).
2. CLAYTON, J. C. — *Characterization of Uranium Dioxide*. Uranium Dioxide: Preparation, Properties and Nuclear Applications, p. 39. USAEC, 1961.
3. FREITAS, C. T. — *Sinterização de urânio em atmosfera redutora* (trabalho apresentado ao XV Congresso da Associação Brasileira de Cerâmica) Rio de Janeiro, 1971. (A ser publicado).
4. FORLAND, R. J.; ALLEN, A. W. e BEALS, R. J. — *Elasticity and Anelasticity of Uranium Oxides at Room Temperature*. ANL-7101, p. 66, 1965.
5. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. & FREITAS, C. T. — *Fabricação dos elementos combustíveis de UO_2 para o conjunto sub-crítico Resuco*. Metalurgia-Rev. Ass. Bras. Met. 2, 88, 220, 1965.
6. EVANGELISTA, J. F. et. al. — Relatório sobre a tecnologia de fabricação de elemento combustível do reator de tipo PWR, CNEN, Rel. n.º 13, p. 24, 1971.
7. Ref. 3 citada.
8. ATOMIC ENERGY OF CANADA LIMITED — *Standard Specification for Uranium Dioxide Pellets for Reactor Fuel Elements*. Specification MET-47 issue 3, p. 3, 1967.

DISCUSSÃO

RENATO PAPALEO ⁽¹⁾ — Na página 8 do trabalho consta a assertiva de que foi verificada ausência de defeitos nos contornos dos grãos. Apreciaria se os autores explicassem o fato, tendo em vista que o contorno do grão, em essência, é um defeito.

CLAVER TRENCH DE FREITAS ⁽²⁾ — As especificações canadenses ^(*) orientaram o trabalho apresentado, no concernente à análise da microestrutura das pastilhas de UO_2 . Nelas se estabelece um limite superior para as áreas correspondentes a porosidades, observadas em secções ceramográficas de pastilhas. Com frequência no caso do UO_2 , essas porosidades são consideráveis entre grãos, na região de seus contornos; no contexto das mencionadas especificações, tais porosidades constituirão certamente um "defeito" se ultrapassarem 10% da área total da secção ceramográfica. Defeitos desse tipo não foram observados em nossas pastilhas.

HENRIQUE J. GOMES CARVALHINHOS ⁽³⁾ — O expositor nos mostrou detalhes da instalação para a produção de sinterizados de UO_2 . Ao verificar que o correspondente processo de produção foi desenvolvido aqui no Brasil, gostaria, se possível, que o expositor fornecesse maiores detalhes, sobretudo quanto à influência da razão O/U nos resultados de sinterização, bem como relativamente aos métodos utilizados para determinar aquela relação.

C. T. FREITAS — Em trabalhos anteriores, desenvolvidos no Instituto de Energia Atômica de São Paulo, verificou-se que a relação O/U tem uma influência muito grande quando se sinterizam óxidos de urânio em atmosfera inerte. Tal influência é bem menos acentuada quando a sinterização se desenvolve em atmosfera redutora, porque na fase inicial do processo a relação O/U torna-se consideravelmente menor que a inicial, devido à ação de redução dos gases; há evidência de que já a $1200^\circ C$ se tem O/U menor que 2,02, para óxidos cujas relações O/U se situavam entre 2,06 e 2,08. Assim sendo, nas temperaturas de sinterização empregadas, da ordem de $1600^\circ C$ o óxido se apresenta com sua composição muito próxima à estequiométrica, ainda que inicialmente a relação O/U do óxido varie em amplo intervalo; dessa forma,

os conhecidos benefícios de excesso de oxigênio se reduzem às fases iniciais da sinterização, influenciando relativamente pouco as densidades finais e a cinética do processo.

No concernente ao método para determinar a relação O/U, experiências realizadas no Laboratório Nacional de Argonne (EUA) indicaram que o método gravimétrico mencionado neste trabalho e descrito na referência (4), revela-se satisfatório para o controle de qualidade na produção de UO_{2+x} ($x < 0,67$). É basicamente também o processo adotado pela especificação canadense de 1972, para pastilhas de UO_2 .

STEPHAN WOLYNEC ⁽⁴⁾ — Gostaria de obter informações quanto à capacidade de produção de pastilhas, no Instituto de Energia Atômica. Pelo que me foi dado entender, dispõem os senhores de uma unidade piloto, semi-industrial.

C. T. FREITAS — A unidade piloto de que dispomos pode produzir cerca de 8 toneladas de pastilhas de UO_2 , por ano, para as condições de trabalho atualmente previstas. Todavia, a capacidade de produção poderá ser aumentada consideravelmente, se assim o exigirem nossos futuros programas.

H. J. G. CARVALHINHOS — O expositor informou que o Instituto de Energia Atômica dispõe presentemente de um método para controlar adequadamente o tamanho de grão de UO_2 , mas não o especificou. É possível conhecer detalhes a respeito?

C. T. FREITAS — Nas primeiras sinterizações em atmosfera de hidrogênio, realizadas no Instituto de Energia Atômica, tivemos problemas com os tamanhos de grãos. Parece-nos que tal se deveu a tempos de resfriamento excessivamente longos. O aumento da velocidade de resfriamento, mediante movimentação adequada dos botes de sinterização, no interior do forno, permitiu solucionar a questão.

H. J. CARVALHINHOS — O processo de sinterização que os senhores vêm usando é descontínuo. Em suas novas instalações, o processo a ser utilizado será contínuo ou descontínuo?

C. T. FREITAS — Nas novas instalações, o forno de sinterização receberá um bote cada 15 ou 30 minutos, que deslocará toda uma fila de botes já no interior da mufla. Classificamos tal processo como semi-contínuo.

^(*) MET-47 Atomic Energy of Canada Limited — Standard Specification for Uranium Dioxide Pellets for Reactor Fuel Elements — Specification Met-47 issue 3, 1967.

(1) Membro da ABM. Engenheiro Metalurgista e Ph.D.; Assessor de Direção no Instituto de Pesquisas Tecnológicas; São Paulo, SP.

(2) Co-autor da CT.

(3) Ph.D.; Chefe do Grupo de Metalurgia da Junta de Energia Nuclear; Portugal.

(4) Membro da ABM. Engenheiro Metalurgista e Ph.D.; Assessor de Divisão do IPT Instituto de Pesquisas Tecnológicas; São Paulo, SP.