ESTUDO DA PERDA DE ESPESSURA NO PROCESSO DE DECAPAGEM UTILIZADO NA FABRICAÇÃO DE COMBUSTÍVEL NUCLEAR PARA REATORES DO TIPO MTR.

Elâine Arantes Jardim Martins* e José Maria Fidélis*

*IPEN/CNEN-SP
Caixa Postal 11049
05422-970, São Paulo, SP, Brasil
e-mail: elainc@.net.ipen.br

RESUMO

Apresenta-se um estudo para a determinação da espessura perdida durante o processo de tratamento superficial dos componentes utilizados em elementos combustíveis nucleares para reatores do tipo MTR.

Foram feitos testes de decapagem e avaliadas as condições de processo à diferentes tempos.

As placas e componentes foram avaliadas através de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV), a fim de determinar a camada de óxido de alumínio retirada.

INTRODUÇÃO

Realizaram-se anteriormente a este trabalho, no Departamento de Metalurgia Nuclear, estudos de observação do estado superficial do alumínio utilizado na confecção de peças para fabricação de placas combustíveis, com auxílio de um Microscópio Eletrônico de Varredura. Foram verificadas impurezas superficiais provenientes de várias fontes [1,2], por isso estabeleceu-se um tratamento químico nas amostras, com a finalidade de eliminar as impurezas observadas. O material utilizado na fabricação das molduras e revestimentos é constituído da liga ASTM-1060.

Devido ao fato de as placas combustíveis possuírem uma espessura fina, aproximadamente 1,52mm [6], torna-se necessário um controle da camada retirada durante o processo de tratamento superficial, a fim de garantir a não exposição do "cerne" da placa, o qual é constituído por U_3O_8 e alumínio.

O tratamento superficial utilizado na limpeza da superfície de peças de alumínio foi sugerido por BRAGA, MENEZES E CARDOSO [1], em um relatório interno do Departamento de Metalurgia Nuclear.

O procedimento utilizado para realização deste tratamento superficial é o seguinte:

1. imersão em solução de NaOH (6 a 10% em peso) a 60°C durante 1 minuto;
2. lavagem em água morna (35 - 40°C) corrente por 1 minuto;
3. imersão em solução de HNO_3 (30 a 50% em peso) à temperatura ambiente durante 1 minuto;
4. lavagem em água fria corrente por 5 minutos;
5. lavagem em água desmineralizada morna (35 - 40°C) corrente por 15 minutos;
6. imersão em solução de HNO_3 (10% em peso) a temperatura ambiente durante 1 minuto;
7. lavagem em água fria corrente por 5 minutos;
8. lavagem em água desmineralizada fria corrente por 5 minutos;
9. secagem ao ar.

Porém, no presente trabalho, foram utilizadas apenas as quatro primeiras etapas do procedimento supra mencionado [3,4].

Este trabalho visa a determinação da espessura perdida durante o processo de decapagem das placas e componentes utilizados na fabricação do elemento combustível, bem como a determinação da espessura da camada de óxido de alumínio [5] retirada durante este processo.

PARTE EXPERIMENTAL

A parte experimental deste trabalho divide-se em duas etapas distintas a saber:

1. Estudo da perda de espessura durante o processo de decapagem das placas e componentes utilizados na fabricação do elemento combustível (item III.2).
2. Estudo da remoção da camada de óxido de alumínio retirada durante o processo de decapagem das placas e componentes utilizados na fabricação do elemento combustível, bem como a quantificação desta (item III.3).

Materiais e Reagentes.

- Paquímetro
- Micrômetro
- Soda 10% (60°C)
- Ácido Nítrico 40%
- Água desmineralizada
- Secadores VANA
- Balança Analítica

Descrição do método utilizado para cálculo de perda de espessura.

1. Inicialmente, as peças foram desengraxadas com acetona.
2. Pesou-se e mediram-se o comprimento, largura e espessura.
3. Fez-se a primeira decapagem de acordo com o procedimento descrito no item I.1. porém, alterando-se o tempo de permanência na soda para 15 minutos.
4. Após o seu resfriamento, pesou-se e mediu-se novamente a peça.
5. Repetiu-se o procedimento aumentando-se os tempos de decapagem.

Descrição do método utilizado para cálculo da camada de óxido de alumínio retirada no processo de decapagem.

Para identificar e quantificar a camada de óxido de alumínio, foram feitos os seguintes testes:

Procedimento A : Análise da amostra de revestimento de alumínio pela técnica de Microscopia Eletrônica de Varredura - amostra 0.

Procedimento B : Desengraxe da peça com acetona p.a. e posterior análise pela técnica citada no procedimento A - amostra 3.1.

Procedimento C : Decapagem por 5 segundos, de acordo com o procedimento descrito no item I.1 e posterior análise pela técnica citada no procedimento A - amostra 3.

Procedimento D : Decapagem por 15 segundos, de acordo com o procedimento descrito no item I.1 e posterior análise pela técnica citada no procedimento A - amostra 2.

Procedimento E : A mesma amostra do procedimento D, porém analisada após uma semana de exposição ao ar - amostra 2.1.

Procedimento F : Decapagem por 1 minuto, de acordo com o procedimento descrito no item I.1 e posterior análise pela técnica citada no procedimento A - amostra 1.

RESULTADOS

Medidas das peças antes e depois da Decapagem

Os dados apresentados a seguir correspondem aos melhores resultados obtidos para cada tempo.

Observação : as espessuras são uma média de 6 medidas em pontos diferentes da peça.

Tabela I : Dados obtidos para 15 minutos de decapagem

Antes da decapagem					Após a decapagem			
nº da peça	comprimento (mm)	largura (mm)	espessura (mm)	massa (g)	comprimento (mm)	largura (mm)	espessura (mm)	massa (g)
1	189,80	119,70	2,430	148,93	189,60	119,60	2,283	139,23
2	189,60	119,40	2,135	130,40	189,30	119,30	1,992	118,07
3	189,70	119,40	2,007	122,63	189,60	119,30	1,857	112,54

Tabela II : Dados obtidos para 30 minutos de decapagem.

Antes da decapagem					Após a decapagem			
nº da peça	comprimento (mm)	largura (mm)	espessura (mm)	massa (g)	comprimento (mm)	largura (mm)	espessura (mm)	massa (g)
1	189,45	119,30	2,112	128,74	189,15	119,0	1,828	110,57
2	189,25	119,30	1,853	112,83	188,95	119,0	1,542	94,56
3	189,10	118,85	1,618	98,14	188,80	118,55	1,335	80,11

Tabela III : Dados obtidos para 45 minutos de decapagem.

Antes da decapagem					Após a decapagem			
nº da peça	comprimento (mm)	largura (mm)	espessura (mm)	massa (g)	comprimento (mm)	largura (mm)	espessura (mm)	massa (g)
1	189,30	119,20	1,843	112,19	188,85	118,75	1,423	84,93
2	188,90	118,45	2,123	128,20	188,45	118,00	1,705	100,91
3	189,60	119,40	2,152	131,42	189,15	118,95	1,725	104,37

Tabela IV : Resumo dos dados para 15 minutos de decapagem.

PERDAS				CÁLCULOS		
Comprimento (mm)	Largura (mm)	Espessura média (mm)	Massa (g)	Volume Perdido (mm^3)	Perda de espessura (mm/min)	Perda de massa (g/mm^3)
0,20	0,10	0,147	9,70	3.437,64	$9,80x10^{-3}$	$2,82x10^{-3}$
0,30	0,10	0,143	12,33	3.346,33	$9,53x10^{-3}$	$3,68x10^{-3}$
0,10	0,10	0,150	10,09	3.454,91	$10,00x10^{-3}$	$2,92x10^{-3}$
0,20	0,10	0,147	10,707	3.412,96	$9,78x10^{-3}$	$3,14x10^{-3}$

Tabela V : Resumo dos dados para 30 minutos de decapagem.

PERDAS				CÁLCULOS		
Comprimento (mm)	Largura (mm)	Espessura média (mm)	Massa (g)	Volume Perdido (mm^3)	Perda de espessura (mm/min)	Perda de massa (g/mm^3)
0,30	0,30	0,284	18,17	6.587,95	$9,47x10^{-3}$	$2,76x10^{-3}$
0,30	0,30	0,311	18,27	7.164,21	$10,37x10^{-3}$	$2,55x10^{-3}$
0,30	0,30	0,283	18,03	6.483,51	$9,43x10^{-3}$	$2,78x10^{-3}$
0,30	0,30	0,293	18,157	6.745,22	$9,76x10^{-3}$	$2,70x10^{-3}$

Tabela VI : Resumo dos dados para 45 minutos de decapagem.

PERDAS				CÁLCULOS		
Comprimento (mm)	Largura (mm)	Espessura média (mm)	Massa (g)	Volume Perdido (mm^3)	Perda de espessura (mm/min)	Perda de massa (g/mm^3)
0,45	0,45	0,420	27,26	9.674,37	$9,33x10^{-3}$	$2,82x10^{-3}$
0,45	0,45	0,418	27,29	9.588,30	$9,29x10^{-3}$	$2,85x10^{-3}$
0,45	0,45	0,427	27,05	9.906,04	$9,49x10^{-3}$	$2,73x10^{-3}$
0,45	0,45	0,422	27,200	9.722,90	$9,37x10^{-3}$	$2,80x10^{-3}$

Tabelas de medidas das espessuras em 6 pontos diferentes de cada peça.

Tabela VII : Medidas para 15 minutos

15 minutos de decapagem					
Experimento número 1		Experimento número 2		Experimento número 3	
antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)	antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)	antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)
2,43	2,28	2,14	2,00	2,02	1,85
2,44	2,29	2,14	1,98	2,00	1,86
2,44	2,27	2,14	2,01	2,01	1,85
2,42	2,29	2,13	1,99	2,02	1,85
2,40	2,28	2,14	2,00	2,01	1,86
2,45	2,29	2,12	1,97	1,98	1,87
2,430	2,283	2,135	1,992	2,007	1,857

Tabela VIII : Medidas para 30 minutos

30 minutos de decapagem					
Experimento número 1		Experimento número 2		Experimento número 3	
antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)	antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)	antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)
2,10	1,85	1,87	1,54	1,62	1,34
2,11	1,85	1,87	1,54	1,62	1,34
2,08	1,83	1,87	1,54	1,61	1,34
2,14	1,82	1,84	1,54	1,62	1,33
2,13	1,82	1,84	1,54	1,63	1,34
2,11	1,80	1,83	1,55	1,61	1,32
2,112	1,828	1,853	1,542	1,618	1,335

Tabela IX : Medidas para 45 minutos

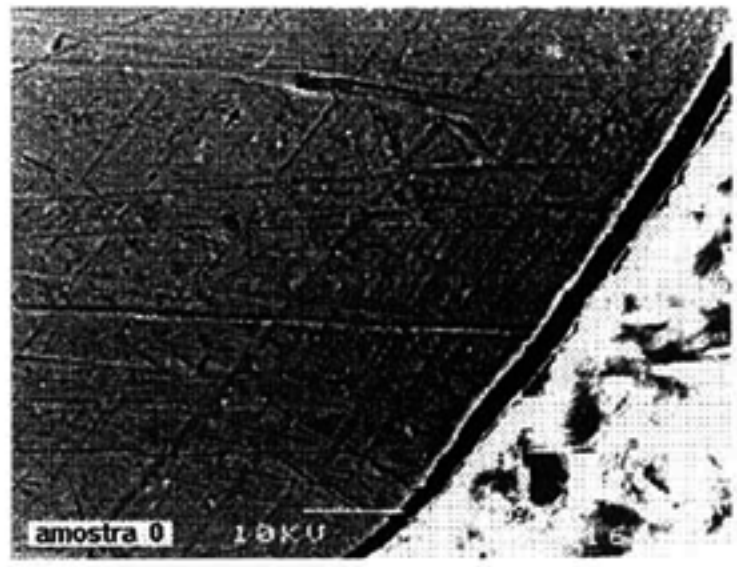
45 minutos de decapagem					
Experimento número 1		Experimento número 2		Experimento número 3	
antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)	antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)	antes da decapagem (mm)	após a decapagem (mm)
1,84	1,42	2,12	1,68	2,14	1,73
1,84	1,42	2,12	1,73	2,16	1,74
1,83	1,42	2,12	1,73	2,16	1,72
1,85	1,42	2,12	1,67	2,15	1,72
1,85	1,43	2,13	1,67	2,16	1,73
1,85	1,43	2,13	1,75	2,14	1,71
1,843	1,423	2,123	1,705	2,152	1,725

Análise dos dados obtidos por Microscopia Eletrônica de Varredura

Os resultados apresentados abaixo foram obtidos nas mesmas condições de análise, com ampliação de 1.500 vezes. Foi feita a identificação da camada de óxido de alumínio na superfície da peça, porém devido ao fato de a maioria das espessuras destas camadas serem extremamente finas, < 1μm, não foi possível quantificá-las com exatidão, apenas aproximadamente.

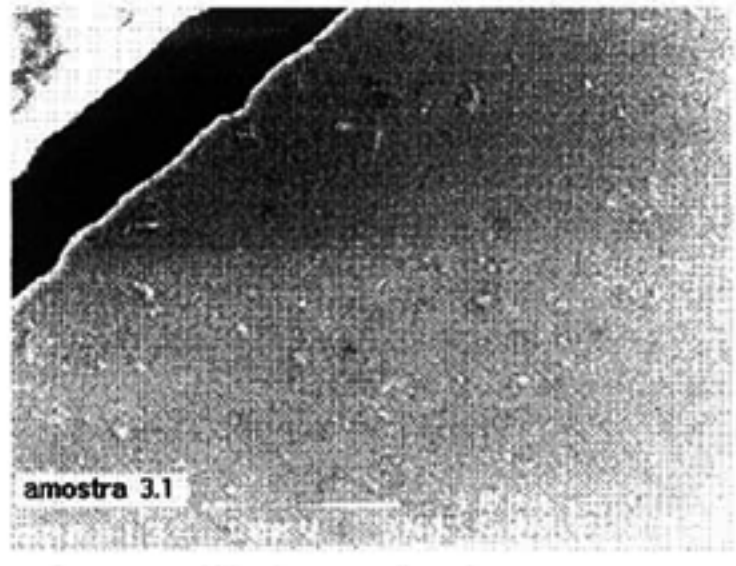
Observação: tomou-se o cuidado de eliminar o "efeito de borda" nas análises das amostras, para que fosse possível certificar que a camada identificada é realmente Al_2O_3.

Resultado de análise da amostra 0 (procedimento A).



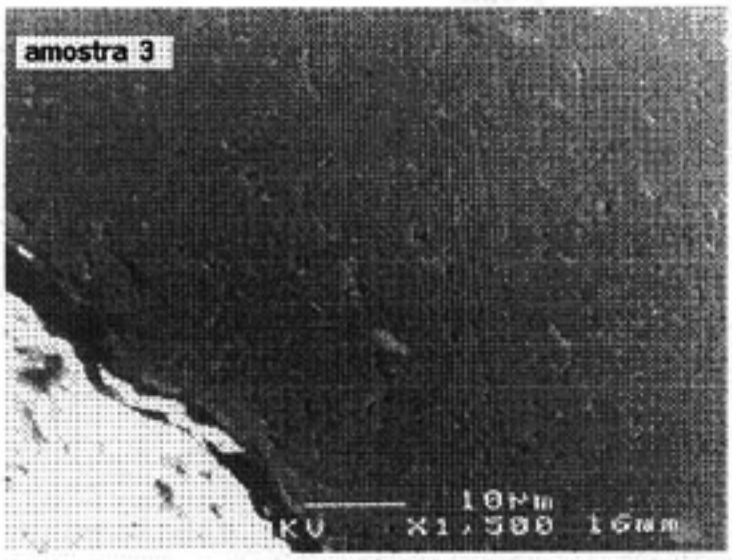
O valor médio da camada existente na amostra 0 (original sem tratamento superficial) é de aproximadamente 0,75μm, com valor máximo de 1,3μm.

Resultado de análise da amostra 3.1 (procedimento B).



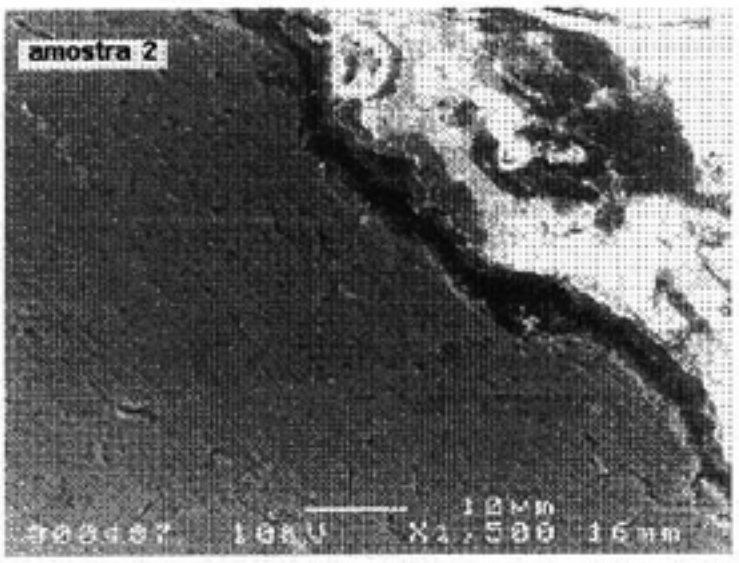
O valor médio da camada existente na amostra 3.1, após o desengraxe, é de aproximadamente 0,5μm, com valor máximo de 0,75μm e valor mínimo de 0,25μm.

Resultado de análise da amostra 3 (procedimento C).



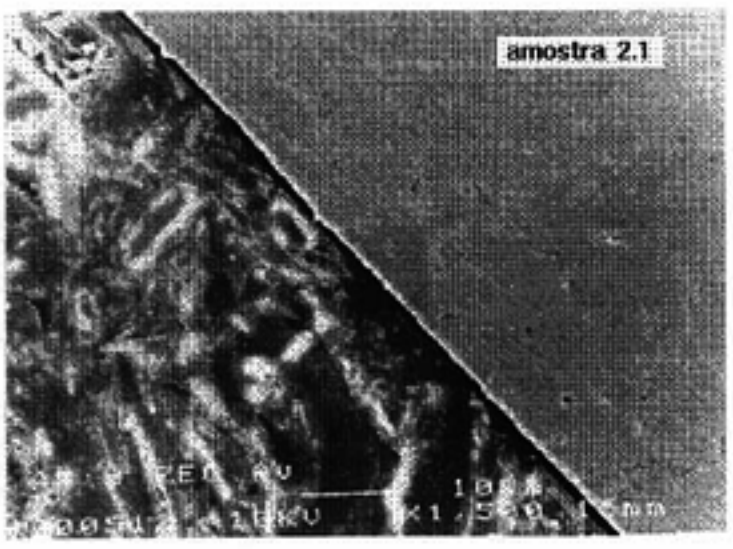
A camada existente na amostra 3, após decapagem por 5 segundos, é praticamente indetectável, isto é, < 0,1μm quase na totalidade do perímetro da peça analisada. Porém devido ao pequeno tempo, a operação de decapagem não é suficientemente perfeita, surgindo assim algumas poucas "manchas" na superfície com valor máximo de aproximadamente 2μm. Estas "manchas" ocorrem devido à aglomeração, em alguns pontos, da camada de óxido de alumínio retirada.

Resultado de análise da amostra 2 (procedimento D).



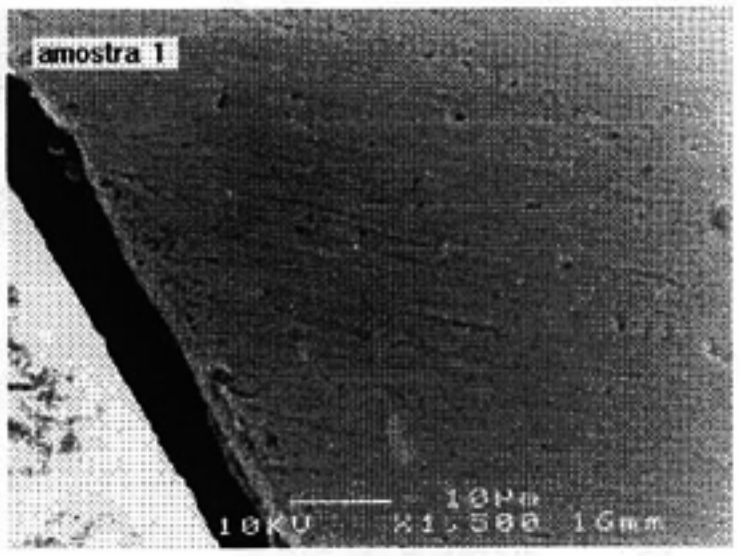
A camada existente na amostra 2, após decapagem por 15 segundos, é praticamente indetectável, isto é, < 0,1μm quase na totalidade do perímetro da peça analisada.

Resultado de análise da amostra 2.1 (procedimento E).



O valor médio aproximado da camada na amostra 2.1 é de 0,6μm, com valor máximo de cerca de 1μm.

Resultado de análise da amostra 1 (procedimento F).



A camada existente na amostra 1, após a decapagem de 1 minuto, é indetectável, isto é, < 0,1μm na totalidade do perímetro da peça analisada.

DISCUSSÃO

De acordo com os dados apresentados, observou-se que os melhores resultados para cálculos são obtidos após 30 minutos de decapagem, onde tem-se uma perda considerável e constante, o que garante cálculos mais precisos.

Nas tabelas VII e IX apresentadas, pode-se observar que em 1 minuto de decapagem, a espessura média perdida é $9{,}56 \times 10^{-3}$mm; portanto, a camada retirada é aproximadamente $4{,}78 \times 10^{-3}$ mm/min em cada face da peça ou, $7{,}97 \times 10^{-5}$mm/s.

Com relação aos resultados obtidos por Microscopia Eletrônica de Varredura, pode-se observar, na amostra 0 (procedimento A), que a camada de óxido de alumínio presente em toda a superfície mede 0,75μm em média e que a maior camada encontrada chega a cerca de 1,3μm. Portanto, são necessários aproximadamente 10 segundos de decapagem para retirar a camada de Al_2O_3.

A amostra 2.1 (procedimento E), apresentou uma camada com valor médio de aproximadamente 0,6μm, o que significa que o alumínio sofreu uma passivação durante os dias em que ficou exposto ao ar.

O resultado de análise da amostra 1 (amostra final) a qual foi decapada nas condições normais de operação no processo de tratamento superficial mostra a ausência da camada de óxido de alumínio.

As amostras foram analisadas pela técnica de Fluorescência de Raios-X, porém não foi possível quantificar o óxido de alumínio por esta técnica de análise.

CONCLUSÃO

A principal preocupação no processo de decapagem é garantir a não exposição do núcleo da placa combustível, o qual é constituído de U_3O_8 e alumínio.

Considerando-se a espessura média da placa que é 1,52 ± 0,05mm, a distância entre a superfície e o núcleo 0,35 ± 0,05mm que corresponde ao revestimento [6] e a camada retirada da superfície durante o processo de decapagem 0,005 ± 0,001mm/min em média, concluiu-se que a decapagem realizada no processo de tratamento superficial não representa perigo para o núcleo da placa.

Concluiu-se também que o tempo de decapagem de 1 minuto, estabelecido pelo processo de tratamento superficial é suficiente para retirar a camada de óxido de alumínio existente na superfície da placa, sem comprometer o núcleo desta.

REFERÊNCIAS

[1] BRAGA, F.J.C., MENEZES,R., CARDOSO, J.B.C. ***Levantamento inicial das especificações de fabricação do elemento combustível UNC padrão para o IEA-R1.*** 1979. (Relatório Interno, CMN-105, Centro de Metalurgia Nuclear, IPEN).

[2] DURAZZO, M. ***Corrosão de placas combustíveis tipo MTR contendo núcleos de cermets U_3O_8-Al.*** São Paulo, 1985. Dissertação (Mestrado), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

[3] JARDIM, E.A. ***Estudo do efeito do banho de ácido nítrico 10% no processo de tratamento superficial.*** 1989. (Relatório Interno, Doc. n° 103.01-11, Projeto Combustível Nuclear, IPEN).

[4] JARDIM, E.A. *Estudo do efeito do tempo de lavagem no processo de tratamento superficial.* **1989. (Relatório Interno, Doc. n° 103.01-12, Projeto Combustível Nuclear, IPEN).**

[5] PERROTA, J.A.; YOSHIMOTO, A.; RIELLA, H.G.; SOUZA, J.A.B.; DURAZZO, M.; JARDIM, E.A. ***Fenômenos de liberação de hidrogênio de elementos combustíveis tipo MTR observados no reator IEA-R1.*** Anais do III Congresso Geral de Energia Nuclear, Porto Alegre, RS, Abril 1990. In: ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR. Associação Brasileira de Energia Nuclear: anais do 3° Congresso Geral de Energia Nuclear da ... realizado em Porto Alegre, RS, abril 1990.

[6] RELATÓRIOS **e documentação referentes aos elementos combustíveis fabricados no IPEN.** (Relatórios Internos, IPEN 1988-1990)

ABSTRACT

This paper intent to define the thickness pulling out in the superficial treatment of the components used in nuclear fuel production to MTR reactors.

Conditions at different treatments times were evaluated.

The plates and components were evaluated by Scanning Electronic Microscopy (SEM).