

MÉTODOS DE OBTENÇÃO DE PÓ DE  $U_3O_8$   
EMPREGADO EM ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS DO TIPO MTR

*Ricardo Mendes Leal Neto \**  
*Humberto Gracher Riella \**

RESUMO

Com o objetivo de se adotar uma linha simples e econômica de processamento de pó de  $U_3O_8$ , três métodos de obtenção foram estudados: trituração de pastilhas sinterizadas de  $U_3O_8$  (Método-1); sinterização de grânulos de  $U_3O_8$  calcinado (Método-2); e sinterização de grânulos de diuranato de amônio, DUA (Método-3).

O rendimento granulométrico, as características dos pós obtidos, a extensão e as dificuldades de processamento foram considerados como parâmetros de comparação dos métodos.

O Método-2 foi o que produziu os melhores resultados. O Método-3 também produziu bons resultados, porém com dificuldades de manuseio do DUA.

PREPARATION METHODS OF  $U_3O_8$  POWDER FOR MTR FUEL ELEMENTS

ABSTRACT

Three preparation methods of  $U_3O_8$  powder have been studied with the aim of finding a simple and economic processing route: grinding of sintered  $U_3O_8$  pellets (Method-1); sintering of  $U_3O_8$  calcined granules (Method-2); and sintering of ammonium diuranate (ADU) granules (Method-3).

Granulometric yield, powder characteristics and processing steps and difficulties have been taken into account for comparison purposes.

Method-2 have been found to give the best results. Method-3 gives also good results, but there were some difficulties with ADU handling.

\* Projeto Combustível Nuclear (IPEN/CNEN-SP)  
Cidade Universitária "Armando de Salles Oliveira"  
Travessa R, 400 CEP 05508 São Paulo SP

## I - INTRODUÇÃO E OBJETIVOS

São bastante difundidos no mundo os elementos combustíveis do tipo placa à base de alumínio utilizados em reatores de pesquisa e de teste de materiais. Frequentemente, estes elementos são designados como do tipo MTR (Materials Testing Reactor), uma vez que foram originalmente projetados para aquele reator<sup>(1)</sup>.

Tem sido um dos propósitos desta instituição, já desde a década de sessenta, o desenvolvimento do processo de fabricação de elementos combustíveis do tipo MTR. O domínio desta tecnologia implica numa economia de divisas, devido a não importação de elementos para o reator IEA-R1 (operando no instituto desde 1957), e torna viável uma possível participação no mercado exportador.

Uma etapa importante desse processo é a obtenção do composto de urânio que, disperso numa matriz de alumínio, formará o núcleo de cada placa combustível. Dentre os compostos de urânio normalmente utilizados, optou-se, no IPEN, pelo  $U_3O_8$ , que vem sendo empregado como combustível de reatores de pesquisa e de teste de materiais há mais de trinta anos<sup>(2)</sup>. Apesar de se verificar, a nível internacional, a aplicação de outros compostos com maior teor de urânio, o  $U_3O_8$  continua sendo uma alternativa viável nos casos onde se deseja obter uma concentração de urânio de até  $3,2g/cm^3$  na placa combustível<sup>(3)</sup>.

Um esforço considerável já foi realizado neste instituto no que se refere à fabricação e ao controle de qualidade de placas combustíveis contendo dispersões de  $U_3O_8$ -Al (cermets). No entanto, há uma carência de trabalhos específicos sobre o processamento de pós de  $U_3O_8$  com características adequadas à aplicação em questão.

Visando o processamento de  $U_3O_8$  de um modo simples e econômico, avaliou-se comparativamente alguns métodos de obtenção levando-se em conta os seguintes aspectos:

- características do pó de  $U_3O_8$  obtido;
- rendimento granulométrico;
- extensão e dificuldade do método.

## II - TRABALHO EXPERIMENTAL

A matéria prima escolhida para este estudo foi o diuranato de amônio (DUA), nuclearmente puro.

Foram empregadas três linhas de trabalho, conforme observado na figura 1. No Método-1, que tem por base o que vinha sendo adotado no IPEN, o pó de  $U_3O_8$  é resultante da trituração de pastilhas sinterizadas. Nos Métodos 2 e 3, obtém-se o pó de  $U_3O_8$  mediante a desagregação de grânulos sinterizados de modo livre, portanto, sem conformação prévia. A diferença é que, no Método-2, sinteriza-se grânulos de  $U_3O_8$  proveniente da calcinação do DUA, e no Método-3, grânulos de DUA são diretamente sinterizados. Procedimento semelhante ao Método-2 foi adotado anteriormente na Alemanha Ocidental<sup>(4)</sup>. A adoção do Método-3, neste estudo, justifica-se pela maior sinterabilidade do DUA em relação ao  $U_3O_8$ .

O DUA, como recebido, foi previamente secado e moído, visando uma calcinação mais uniforme e eficiente. Ela foi realizada ao ar, a  $600^\circ C$  por três horas.

A granulação, por meio de compactação e trituração, foi empregada com diferentes propósitos nos três métodos. No Método-1, ela tem por objetivo o aumento da densidade a verde das pastilhas.

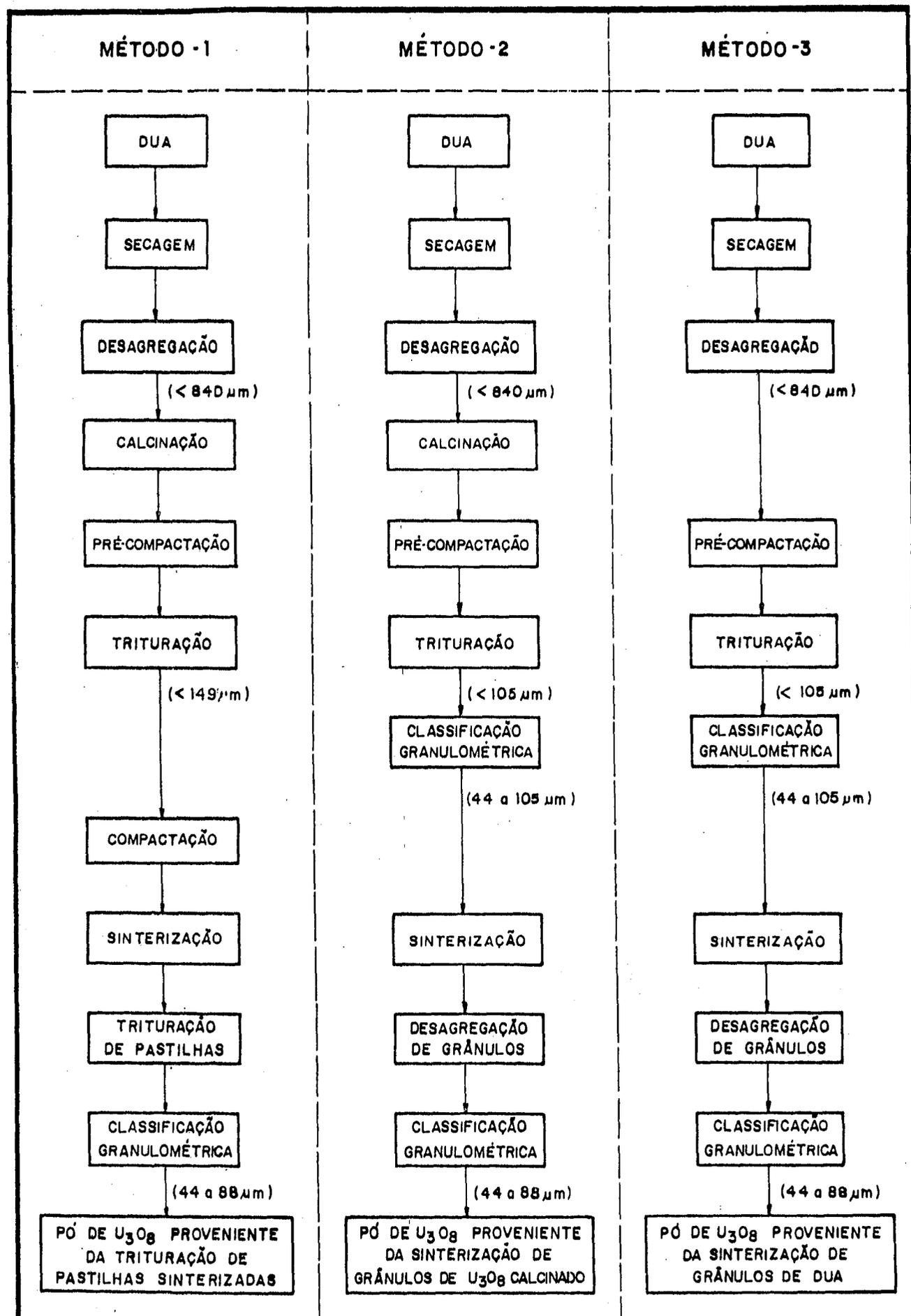


FIGURA 1 - Etapas de processamento dos métodos estudados

Nos Métodos 2 e 3, a granulação possibilita um controle morfológico e granulométrico dos grânulos, antes da sinterização, o que é conveniente do ponto de vista de características do pó final e de rendimento granulométrico do processo.

Grânulos e pastilhas foram sinterizados ao ar, a 1400°C durante 6 horas. A sinterização é de especial importância para a obtenção de um pó de  $U_3O_8$  com baixa área de superfície específica e de elevada densidade.

Uma descrição mais detalhada dos procedimentos experimentais aqui empregados poderá ser encontrada na ref. 5.

Uma vez obtidos os três pós de  $U_3O_8$  sinterizado, na faixa granulométrica especificada (entre 44 $\mu$ m e 88 $\mu$ m), calculou-se os rendimentos granulométricos das operações envolvidas nos três métodos. Em seguida, procedeu-se a uma extensa caracterização física e química dos pós<sup>(5)</sup>, da qual apresentaremos apenas os itens de maior relevância, ou seja, a área de superfície específica, a análise por microscopia ótica e eletrônica de varredura, e a densidade.

### III - RESULTADOS E DISCUSSÃO

#### III.1 - Rendimento Granulométrico

Na tabela I, são apresentados os rendimentos granulométricos das etapas de classificação após a granulação e a fragmentação de pastilhas e grânulos sinterizados.

Na granulação, obteve-se um maior rendimento no Método-2 do que no Método-3. Deve-se mencionar que o  $U_3O_8$  e o DUA se comportaram distintamente durante a classificação. A classificação do  $U_3O_8$  foi relativamente fácil, pois não houve aglomeração excessiva nas peneiras. Já no caso do DUA, a classificação foi extremamente difícil devido à forte aglomeração, sendo necessário desobstruir periodicamente as aberturas das peneiras. Em razão disso, o rendimento do Método-3, além de ser menor, deve estar superestimado.

Na etapa de fragmentação, o menor rendimento do Método-1 em relação aos Métodos 2 e 3 é atribuído, primeiramente, ao fato de que os grânulos, naqueles dois métodos, foram classificados antes da sinterização, e em segundo lugar, ao maior grau de cominuição das pastilhas sinterizadas.

O rendimento global foi expresso pela porcentagem da massa de pó sinterizado, na faixa granulométrica de interesse, em relação a massa de pó inicial. O melhor rendimento foi obtido com o Método-2.

TABELA I - Rendimentos granulométricos (%) obtidos nas várias etapas de processamento dos Métodos 1, 2 e 3.

Pó (Origem)	Granulação (44 $\mu$ m < $\phi$ < 105 $\mu$ m)	Fragmentação (44 $\mu$ m < $\phi$ < 88 $\mu$ m)	Global (44 $\mu$ m < $\phi$ < 88 $\mu$ m)	Finos ( $\phi$ < 44 $\mu$ m)
Método-1	----	28.5	28.5	71.5
Método-2	58.3	82.6	48.2	10.1
Método-3	53.4	78.3	41.8	11.6

Para se ter uma idéia mais clara da diferença entre os métodos, a porcentagem de finos sinterizados foi calculada de modo global. Nos Métodos 2 e 3, houve praticamente a mesma geração de finos, enquanto que no Método-1, a porcentagem de finos foi extremamente elevada.

### III.2 - Caracterização dos Pós de $U_3O_8$

#### III.2.1 - Área de superfície específica

A área de superfície específica é uma medida da estabilidade termodinâmica de um pó. Devido a reatividade do alumínio com o  $U_3O_8$ , requer-se um pó inerte, ou seja, de baixa área de superfície específica. A sua determinação foi realizada por adsorção de nitrogênio, segundo o método volumétrico<sup>(6)</sup>. Obteve-se resultados inferiores a  $0,1m^2/g$ , abaixo da faixa de trabalho do equipamento utilizado, indistintamente, com todos os pós.

#### III.2.2 - Microscopia eletrônica e ótica

Na obtenção de placas combustíveis, as dispersões de  $U_3O_8$ -Al são submetidas a uma intensa deformação mecânica (laminação). Nesse processo, as partículas de  $U_3O_8$  sofrem esforços de compressão e de tração, podendo fragmentar-se, prejudicando, principalmente, a estabilidade à irradiação do combustível e suas propriedades mecânicas<sup>(7)</sup>. Para que a fragmentação seja minorizada, do ponto de vista morfológico, as partículas devem ser idealmente esféricas e superficialmente lisas.

Nas micrografias obtidas por microscopia eletrônica de varredura (figura 2), podemos apreciar a morfologia das partículas dos pós de  $U_3O_8$ . Nota-se que a superfície das partículas provenientes do Método-1 é bem mais rugosa e intrincada do que as partículas provenientes do Método-2. Isso era esperado, uma vez que, no primeiro caso, a superfície das partículas é resultante de múltiplas fraturas ocorridas na trituração de pastilhas, enquanto que, no segundo caso, a superfície é praticamente bruta de sinterização, apresentando algumas fraturas de pescoços formados entre grânulos. Entre os pós provenientes dos Métodos 2 e 3 há uma semelhança morfológica, sendo difícil sua distinção.

Partículas mais densas são, geralmente, mais resistentes à fragmentação<sup>(8)</sup>. Por meio da ceramografia (fig.2), avaliou-se qualitativamente a porosidade das partículas. Pode-se observar que as partículas de melhor aspecto provêm do Método-2, por terem menor porosidade e por não evidenciarem trincas grosseiras. O mesmo não se pode dizer do pó do Método-1, uma vez que as partículas parecem ser menos íntegras e resistentes, sofrendo arrancamentos durante o polimento. Já com o Método-3, as partículas parecem ser mais porosas do que as partículas do Método-2, não evidenciando também trincas internas.

#### III.2.3 - Densidade

A técnica utilizada foi a porosimetria de mercúrio. Mediu-se a densidade aparente ( $D_A$ ), ou seja, a razão entre a massa das partículas e o seu volume, incluindo tanto a porosidade aberta quanto a fechada<sup>(9)</sup>, e a densidade final ( $D_F$ ), assim denominada por considerar o volume de poros não preenchidos por mercúrio, à pressão máxima de intrusão (413,7 MPa). Os detalhes do procedimento empregado na determinação das densidades podem ser verificados na referência 5.

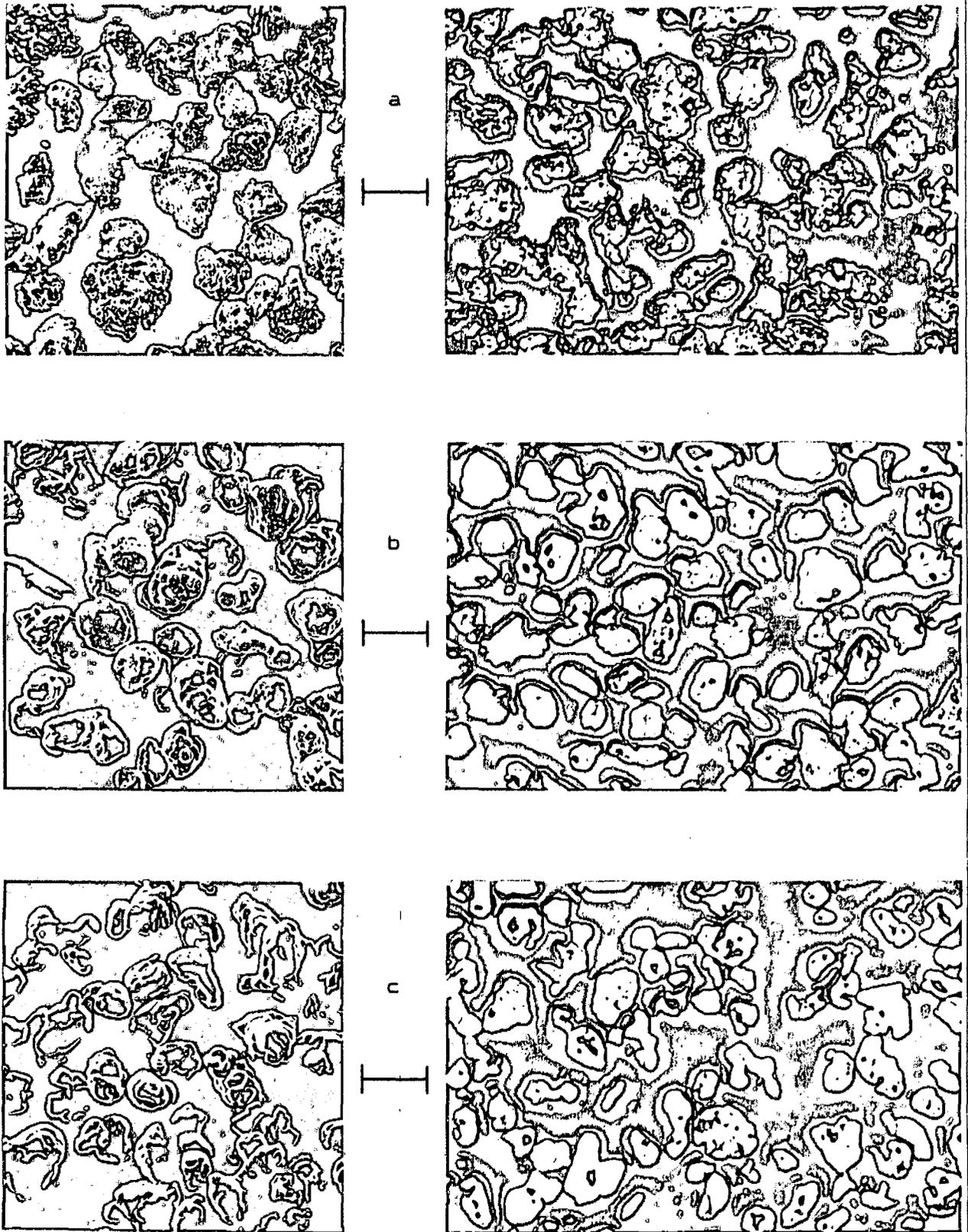


FIGURA 2 - Microscopia eletrônica de varredura (coluna à esquerda) e ótica (coluna à direita) dos pós de  $U_3O_8$  sinterizado ( $44\mu m < \phi < 88\mu m$ ): a) Método-1; b) Método-2; c) Método-3. barra =  $100\mu m$ .

A densidade aparente é de especial importância no caso em questão, uma vez que se deseja um pó de  $U_3O_8$  com baixa porosidade total. Entre pós de  $U_3O_8$  de mesma densidade aparente, aquele de menor porosidade aberta será preferível por propiciar maior retenção de produtos de fissão e por apresentar uma menor área de superfície específica. Portanto, faz-se necessário uma análise conjunta da densidade aparente e final, o que permitirá avaliar a porosidade aberta ou, pelo menos, a porosidade acessível ao mercúrio. Uma densidade elevada pode resultar de um pó com baixa porosidade total (aberta e fechada) ou com elevada porosidade aberta, o que será distinguido mediante a análise da densidade aparente.

Na tabela II, são apresentadas as densidades dos pós obtidos segundo os três métodos. Os Métodos 2 e 3 propiciaram pós com maior densidade aparente, especialmente o Método-2. No Método-1, a menor densidade aparente em combinação com a maior densidade final significa a ocorrência de maior porosidade aberta. O pó do Método-2, além de ser o de densidade maior, é o que tem menor porosidade aberta, uma vez que os valores das densidades aparente e final são os mais próximos.

TABELA II - Densidades dos pós de  $U_3O_8$  sinterizado obtidas por porosimetria de mercúrio.

Pó (origem)	$D_A^*$ (g/cm <sup>3</sup> )	$D_F^*$ (g/cm <sup>3</sup> )
Método-1	7.84	8.31
Método-2	8.09	8.29
Método-3	7.99	8.26

\* Os valores de  $D_A$  e de  $D_F$  estão numa faixa de variação de  $\pm 0.02$  e  $\pm 0.04$  g/cm<sup>3</sup>, respectivamente.

### III.3 - Extensão e Dificuldade dos Métodos

Como se depreende da figura 1, o Método-3 é o que tem menor número de etapas de processamento, uma vez que não há calcinação do DUA. Entretanto, o manuseio do DUA durante a granulação e classificação, demonstrou ser inconveniente devido a problemas de aglomeração e aderência.

Os Métodos 1 e 2 têm o mesmo número de operações, porém o Método-1 envolve a trituração de pastilhas sinterizadas, mais laboriosa que a desagregação de grânulos sinterizados empregada no Método-2.

## IV - CONCLUSÕES

O Método-2, dentre os estudados, é o mais adequado para a obtenção de  $U_3O_8$ , pois combina:

- boas características finais do pó, como maior densidade aparente, baixa área de superfície específica (semelhante aos demais), e morfologia das partículas arredondada (semelhante ao pó do Método-3 e mais conveniente do que o pó do Método-1);

- b) menores dificuldades de manuseio de grânulos no estado calcinado (vantagem em relação ao Método-3), bem como maior facilidade de processamento (vantagem em relação ao Método-1);
- c) melhor rendimento global (48%) e menor geração de finos (10%);

A sinterização direta do DUA demonstrou ser promissora, porém as dificuldades de manuseio sugerem que outra forma de granulação, ou mesmo de precipitação, deve ser estudada.

#### V - REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. HUFFMAN, J.R. The materials testing reactors. *Nucleonics*, 12(4):21-6, 1954.
2. CUNNINGHAM, J.E.; BEAVER, R.J.; THURBER, W.C.; WAUGH, R.C. Fuel dispersions in aluminium-base elements for research reactors. In: ATOMIC ENERGY COMMISSION. *Fuel elements conference held in Paris, 18-23 November, 1957*. Oak Ridge, Tenn., 1958. v.1, p.269-97. (TID-7546).
3. SNELGROVE, J.L. Overview of reduced-enrichment fuels development testing and specification. *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 55:274-6, 1987.
4. 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, 1980*. Argonne, Ill., 1980. p.201-11. (ANL/RERTR/TM-3).
5. LEAL NETO, R.M. *Estudo de processos de obtenção de pó de  $U_3O_8$  empregado em elementos combustíveis do tipo MTR*. São Paulo, 1989. (Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).
6. FRISH, B. & THIELE, W.R. A measuring method for the determination of density, specific surface area and porosity of powders and compacted bodies. *Powder Metall. Int.*, 18(1):17-21, 1986.
7. CINTRA, S.H.L.; GENTILE, E.F.; NISHIOKA, I.; ABRÃO, M.A.S.; AMBRÓSIO Fº, F. Análise de variáveis do processo de fabricação de placas com núcleos de dispersões de  $Al-U_3O_8$ . *Metal.*, 26(146):31-43, 1970.
8. HOBSON, D.O. & LEITTEN JR., C.F. *Characterization of  $U_3O_8$  dispersions in aluminium*. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., Feb. 1967. (ORNL-TM-1962).
9. MUKAIDA, K.I. Density measurement of small porous particles by mercury porosimetry. *Powder Technol.*, 29(1):99-107, 1981.