

FREITAS, C.T., NOGUEIRA; R.A., BORGO, H., TOMASI, R. (Centro de Metalurgia Nuclear-Instituto de Energia Atômica, São Paulo, Brasil) Determinação de heterogeneidades e solubilidade sólida em combustíveis nucleares  $UO_2-ThO_2$  para reatores HTGR e PWR.

Combustíveis nucleares constituídos por óxidos de urânio e tório têm grande importância para aplicação em reatores de alta temperatura resfriados por gás (HTGR) e, mais recentemente naqueles do tipo Angra (PWR), arrefecidos por água pressurizada. (Refs.1,2). Os métodos de fabricação de tais combustíveis podem conduzir a soluções sólidas urânio-tório ou a misturas heterogêneas desses materiais. Enquanto a solubilidade sólida pode ser constatada por métodos clássicos de difratometria de raios X, a verificação do grau de heterogeneidade de misturas de óxidos apresenta problemas para cuja solução a microscopia e microsonda eletrônicas estão em condições de dar contribuições apreciáveis. Dois processos são frequentemente utilizados para produzir combustíveis de  $UO_2-ThO_2$ . O primeiro consiste em compactar pós de urânio e tório, seguindo-se ou aplicando-se ao mesmo tempo (compactação a quente) um tratamento térmico a altas temperaturas (sinterização). Dependendo principalmente do tipo de pós e das condições de sinterização, obtém-se combustíveis com diferentes graus de heterogeneidade, podendo-se mesmo alcançar solubilidade sólida total. O segundo processo denomina-se sol-gel (Ref.1) e normalmente produz soluções sólidas, mas não é sempre viável, economicamente. A micrografia I (eletrônica de varreduras, elétrons secundários) corresponde a uma amostra heterogênea de  $UO_2 - 20\% ThO_2$ , produzida por compactação e sinterização. As heterogeneidades presentes não são perfeitamente discerníveis. A Fig.2 apresenta as heterogeneidades como vistas mediante microscópio Steroscan, espectrometro de semi-focalização, utilizando raios X emitidos, com a juste para a linha  $M\alpha_1$  do Th. As zonas claras correspondem a regiões ricas em Th. A linha vertical indica posição de varredura para análise espectrométrica semi-quantitativa, por meio do espectrograma correspondente. A fig. 3 mostra imagem obtida nas mesmas condições da figura anterior, mas neste caso a amostra é uma microesfera obtida pelo processo sol-gel, sendo constituída por uma solução sólida  $UO_2-ThO_2$ . Usando como referência os espectrogramas e as micrografias eletrônicas (obtidas por elétrons secundários e emissão de raios X) correspondentes as soluções sólidas de amostras sol-gel, é possível determinar semi-quantitativamente o grau de heterogeneidade de misturas  $UO_2-ThO_2$ , seja por confronto de imagens como as mostradas nas fig.2 e 3, seja pela aplicação das fórmulas usuais (Ref.3) de espectrometria semi-quantitativa. A fig. 4 é de região idêntica a da fig.1 só que foi obtida usando emissão de raios X; podemos notar regiões claras, ricas em tório. É possível estabelecer correspondência com as zonas claras e escuras da fig-1.

#### REFERÊNCIAS:-

- Ref.1 - Robert B.Holden "Ceramic Fuel Elements". American Society for Metals, Edt.Gordon and Breach Science Publishers, New York - 1966.  
 Ref.2 - A.N.Holden "Dispersion Fuels Elements" American Society for Metals. Edt.Gordon and Breach Science Publishers, New York - 1967.  
 Ref.3 - C.A. Andersen "Microprobe Analysis" A.Wiley - Interscience Publication. John Wiley & Sons, New York - 1973.

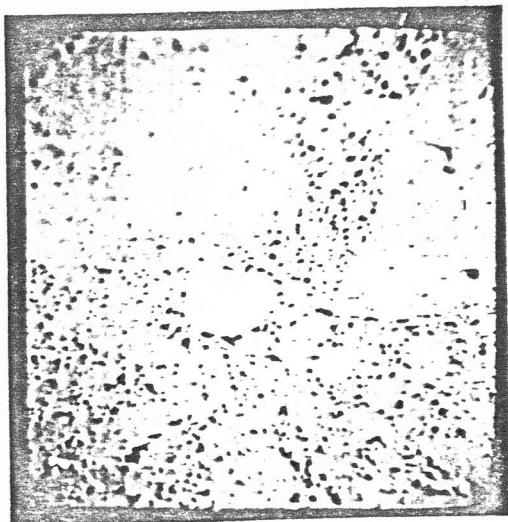


Fig.1 -  $\text{UO}_2\text{-20\%ThO}_2$  compactado e sinterizado a  $1600^\circ\text{C}$ . Micrografia eletrônica da varredura por emissão de elétrons secundários. As zonas menos porosas são ricas em  $\text{UO}_2$ . Aumento 1150 x.

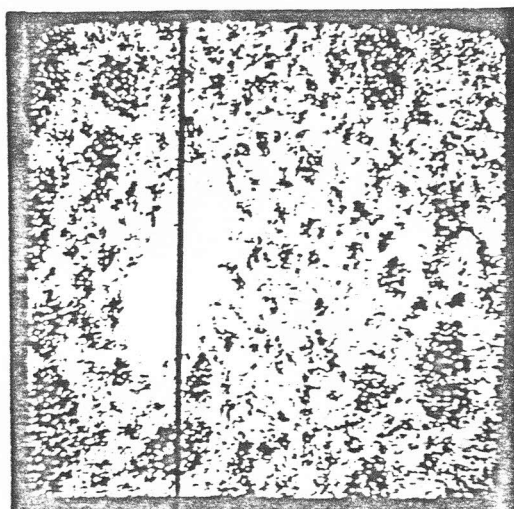


Fig.2 - Mesma amostra da Fig.1 obtida por M.E.V. e espectrômetro de semi-focalização, ajustado para linha M L do Th. Zonas claras são ricas em tório. A linha vertical indica posição de varredura para análise semi-quantitativa. Aumento 240 x.

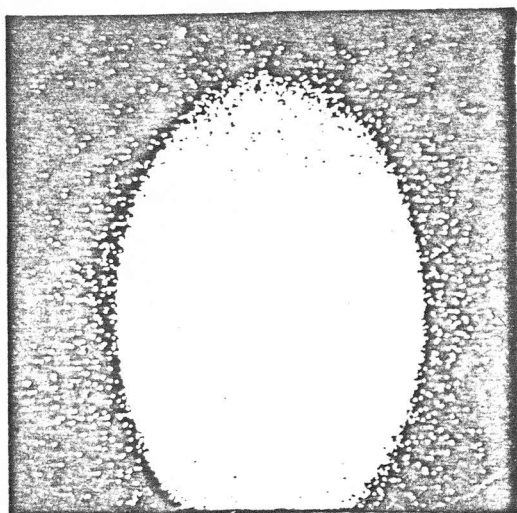


Fig.3 - Micro esfera constituída por solução sólida  $\text{UO}_2\text{-20\%ThO}_2$ . Obtida nas mesmas condições correspondentes a figura 2. Aumento 200 x.

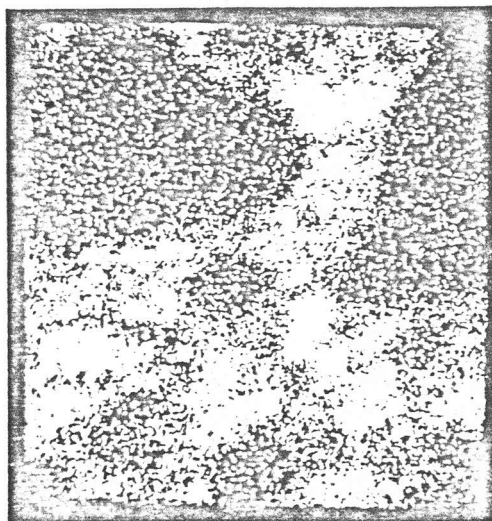


Fig.4 - Micrografia da mesma região da fig.1, obtida por emissão de raios X. As regiões claras correspondem a zonas ricas em tório. Aumento 1150 x.

Determination of heterogeneities and solid solubility in  
 $UO_2-ThO_2$  nuclear fuels for HTGR and PWR reactors.

ABSTRACT

The utilization of a SEM, with attached semi-focusing spectrometer, is demonstrated for the study of heterogeneities and solid solubility in  $UO_2-ThO_2$  nuclear fuels. Using X-ray sample emission, with the spectrometer adjusted for the  $M\alpha_1$  Th line, it is possible to distinguish clearly  $UO_2$  rich heterogeneities, of the order of  $4\ \mu m$ , from those with  $ThO_2$  predominance, as small as  $0,2\ \mu m$ . A reliable identification of zones corresponding to solid solutions is possible comparing them with those in SEM micrographs of  $UO_2-ThO_2$  samples, made by the sol-gel process.

RESUMO

Demonstra-se a aplicação de microscópio eletrônico de varredura com espectrômetro de semi-focalização acoplado, no estudo de heterogeneidades e solubilidade sólida em combustíveis nucleares contendo  $UO_2$  e  $ThO_2$ . Utilizando raios-X emitidos pela amostra, com o espectrômetro ajustado para a linha  $M\alpha_1$  do Th, é possível claramente distinguir heterogeneidades ricas em  $UO_2$ , da ordem de  $4\ \mu m$ , e da ordem de  $0,2\ \mu m$  para aquelas com predominância de  $ThO_2$ . A identificação de zonas correspondentes a soluções sólidas é possível mediante comparação com micrografias eletrônicas de amostras de  $UO_2-ThO_2$ , obtidas pelo processo sol gel.